
**Analyse selbstorganisierter
In(Ga)As-Quantenstrukturen mit dem Raster-
Transmissionselektronenmikroskop**

Von der Fakultät für Ingenieurwissenschaften
der Universität Duisburg-Essen
zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktors der Ingenieurwissenschaften
genehmigte Dissertation

von
Andres Sauerwald
aus
Bottrop

Referent: Prof. Dr. rer. nat. G. Bacher
Korreferent: Prof. Dr. rer. nat. D. Jäger
Tag der mündlichen Prüfung: 27. Mai 2008

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungen	4
1 Einleitung	5
2 Grundlagen der Raster-Transmissionsmikroskopie	12
2.1 Physikalische Grundlagen der Raster-Transmissionsmikroskopie	13
2.1.1 Sonde-Probe-Wechselwirkung im RTEM	13
2.2 Eingesetzte Charakterisierungs- und Analysemethoden	19
2.2.1 Die Hellfeld- und Dunkelfeldabbildung	19
2.2.2 Die ordnungszahlsensitive Z-Kontrast-Abbildung	22
2.2.3 Chemische Analyse mittels Elektronenenergieverlust-Spektroskopie	24
2.2.4 Elektronenbeugungsverfahren	34
2.3 Aufbau und Funktionsprinzip des RTEM	36
3 Selbstorganisierte Halbleiter-Quantenstrukturen	40
3.1 Ausgewählte Morphologien selbstorganisierter Halbleiter-Quantenstrukturen	40
3.2 Herstellung selbstorganisierter Quantenstrukturen mittels Epitaxie	43
3.3 Entstehung unterschiedlicher Morphologien	45
3.3.1 Prinzip „Vertical Stacking“	47
3.3.2 Die „Indium-Flush“ Methode	49
3.4 Probenpräparation für die Raster-Transmissionselektronenmikroskopie	51
3.4.1 Querschnittspräparation	52
3.4.2 Draufsichtspräparation	55
3.4.3 Chemisch unterstütztes Ionenstrahl-Ätzen	56
4 Morphologie optimierter InAs/InGaAs-„Dot in a Well“-Strukturen	57
4.1 „Dots in a Well“-Proben	58
4.2 Struktureller Einfluss des unteren Quantum Wells	60
4.2.1 Gegenüberstellung von Z-Kontrast- und EELS-Messungen	60
4.2.2 Vertikale Wachstumsposition der Quantum Dots	62
4.3 Photolumineszenz und Laser-Eigenschaften der „Dot in a Well“-Proben	65

5 Vertikal korrelierte InGaAs/GaAs Quantum Dots	68
5.1 Probenaufbau	69
5.2 Analyse der räumlichen Korrelation	70
5.3 Strukturelle und morphologische Eigenschaften	73
5.4 Chemische EELS-Analyse	76
6 Morphologie unterschiedlich verspannter InGaAs/GaAs-Quantenstrukturen	81
6.1 InGaAs/GaAs-Proben mit unterschiedlichen Verspannungen	83
6.2 Charakteristische Hellfeldbilder in Querschnittsansicht: QD vs. QDash	84
6.3 Experimentelle Bestimmung der Morphologie aus Querschnitts-Hellfeldaufnahmen	87
6.4 EELS-Analyse	90
6.5 Diskussion	94
7 Größenkontrolle von InAs/InGaAlAs-Quantum Dashes	96
7.1 QDash-Proben	98
7.2 Morphologie	99
7.3 Größenkontrolle	101
7.4 Chemische Analyse	104
7.5 Einstellung der Emissionsspektren	108
8 Zusammenfassung	110
Anhang	113
A Das Programm Nanomess	113
B Konstanten	115
C Formelzeichen	116
Literaturverzeichnis	118
Eigene Veröffentlichungen und Konferenzbeiträge im Rahmen dieser Arbeit	128
Beteiligung an weiteren Veröffentlichungen	130

Abkürzungen

CBED	<u>C</u> onvergent <u>B</u> eam <u>E</u> lectron <u>D</u> iffraction (Elektronenbeugung im konvergenten Strahl)
CCD	<u>C</u> harged <u>C</u> oupled <u>D</u> evice (Ladungsträgergekoppelte Schaltung)
EDS	<u>E</u> nergy <u>D</u> ispersive <u>S</u> pectroscopy (Energiedispersive Spektroskopie)
EEL{S}	<u>E</u> lectron <u>E</u> nergy <u>L</u> oss { <u>S</u> pectroscopy} (Elektronenenergieverlust {Spektroskopie})
ELNES	<u>E</u> nergy <u>L</u> oss <u>N</u> ear <u>E</u> dge <u>S</u> tructure (Kantennahe Energieverlustruktur)
FWHM	<u>F</u> ull <u>W</u> idth at <u>H</u> alf <u>M</u> aximum (Halbwertsbreite)
GSMBE	<u>G</u> as <u>S</u> ource <u>M</u> olecular <u>B</u> eam <u>E</u> pitaxy (Gasquellen Molekularstrahlepitaxie)
GIDAFS	<u>G</u> razing <u>I</u> ncidence <u>D</u> iffraction <u>A</u> nomalous <u>F</u> ine <u>S</u> tructure (Abweichende Feinstruktur der Oberflächenbeugung)
HAADF	<u>H</u> igh <u>A</u> ngle <u>A</u> nnular <u>D</u> ark <u>F</u> ield (Ringförmiges Dunkelfeld großer Winkel)
HOLZ	<u>H</u> igher- <u>O</u> rd <u>E</u> r <u>L</u> aue <u>Z</u> one (Laue Zone höherer Ordnung)
Laser	<u>L</u> ight <u>A</u> mplification by <u>S</u> timulated <u>E</u> mission of <u>R</u> adiation (Lichtverstärkung durch angeregte Emission von Strahlung)
LD	<u>L</u> aser <u>D</u> iode
LED	<u>L</u> ight <u>E</u> mitting <u>D</u> iode (Leuchtdiode)
MBE	<u>M</u> olecular <u>B</u> eam <u>E</u> pitaxy (Molekularstrahlepitaxie)
PL	<u>P</u> hoto <u>l</u> umineszenz
QD	<u>Q</u> uantum <u>D</u> ot (Quantenpunkt)
QDash	<u>Q</u> uantum <u>D</u> ash (Quantenstrich)
QDM	<u>Q</u> uantum <u>D</u> ot <u>M</u> olecule (Quantenpunkt Molekül)
QRing	<u>Q</u> uantum <u>R</u> ing (Quantenring)
QW	<u>Q</u> uantum <u>W</u> ell (Quantenfilm/-trog)
QWire	<u>Q</u> uantum <u>W</u> ire (Quantendraht)
RKM	<u>R</u> aster <u>k</u> raft <u>m</u> ikroskop
RTM	<u>R</u> aster- <u>T</u> unnel <u>m</u> ikroskop
RTM	<u>R</u> aster- <u>T</u> unnel <u>m</u> ikroskop
SAD	<u>S</u> electe <u>d</u> <u>A</u> rea <u>D</u> iffraction (Feinbereichsbeugung)
TEM	<u>T</u> ransmission <u>e</u> lektronen <u>m</u> ikroskop
UHV	<u>U</u> ltra- <u>H</u> och- <u>V</u> akuum
YAG	<u>Y</u> ttrium- <u>A</u> luminium- <u>G</u> ranat
Z-Kontrast	Ordnungszahl- (<u>Z</u> -) <u>K</u> ontrast
ZOLZ	<u>Z</u> ero- <u>O</u> rd <u>E</u> r <u>L</u> aue <u>Z</u> one (Laue Zone nullter Ordnung)

1 Einleitung

„Die Nanotechnologie ermöglicht die gezielte Handhabung und Nutzung winziger Materiestrukturen, die millionenfach kleiner als ein Stecknadelkopf sind. Durch dieses nanotechnologische Know-how lassen sich außergewöhnliche Materialeigenschaften und Funktionalitäten erzielen, die Potentiale für Produktinnovationen in fast allen Technikfeldern und Wirtschaftsbranchen eröffnen [Bu06]“. Mit dieser Einschätzung sind sich Politik, Wirtschaft und Forschung über die zukünftige Bedeutung der Herstellung und Anwendung von Nanostrukturen einig. Die Herstellung von Nanostrukturen aus Halbleitermaterialien bietet den Vorteil auf bewährte Herstellungsverfahren der Mikro- und Optoelektronik zurückgreifen zu können. Das optische und elektrische Verhalten von Nanostrukturen gehorcht allerdings nicht mehr allein den Gesetzen der klassischen Physik. Zur Beschreibung des Verhaltens dieser Strukturen müssen zusätzlich die Gesetze der Quantenmechanik berücksichtigt werden. Solche Nanostrukturen werden im Folgenden als Quantenstrukturen bezeichnet.

In den Bereichen der Mikro- (bzw. Nano-) und Optoelektronik wird das Potential von Quantenstrukturen bereits teilweise in neuen Anwendungen genutzt. Ein Meilenstein in der Nutzung von Quantenstrukturen zur Herstellung von Bauelementen mit neuen optischen und elektrischen Eigenschaften war die epitaktische Herstellung extrem dünner (einige Nanometer dicker) Schichten, die als Quantum Well (QW) bezeichnet werden. Basierend auf diesen quasi zweidimensionalen Quantenstrukturen realisierten Chang, Esaki und Tsu 1974 resonante Tunneldioden (RTD) mit negativen differentiellen Widerständen [Ch74]. Im Bereich der Optoelektronik erkannte man um 1974, dass sich Laser-Eigenschaften im Vergleich zu den damals üblichen Doppelheterostruktur-Laser-Strukturen verbessern lassen, indem man die aktive Schicht nur wenige Nanometer dick macht [Di74]. Dies war der Beginn der intensiven Forschung zur Entwicklung von QW-Laser-Strukturen. 1982 erkannten Arakawa et al., dass eine sukzessive Reduzierung der Dimensionalität des laseraktiven Mediums eine Verbesserung der Laser-Eigenschaften zur Folge haben müsste [Ar82].

Halbleiterstrukturen, deren Ladungsträgerbewegung in zwei (Quantum Wire) und allen drei (Quantum Dot) Raumrichtungen eingeschränkt ist, zeigen gegenüber den mittlerweile etablierten Quantum Well-Strukturen, und erst recht gegenüber Volumen-Material, grundlegend neue Eigenschaften. Das vollständige "Einsperren" der Ladungsträger (Elektronen und Löcher) in quasi nulldimensionalen Quantum Dots führt zu einer Diskretisierung der Zustandsdichte wie in einem künstlich erzeugten Atom. In Bezug auf die Laser-Eigenschaften niederdimensionaler Quantenstrukturen beschrieben Arakawa et al., dass mit der Reduktion der Dimensionalität der Quantenstrukturen aufgrund der unterschiedlichen Zustandsdichte ein höherer Materialgewinn, kleinere Schwellstromdichten, eine geringere Abhängigkeit der Schwellstromdichte von der Temperatur und größere Modulationsbandbreiten zu erwarten sein müssten. Fortan wurde die Forschung an quasi nulldimensionalen Quantum Dot (QD)-Strukturen stark intensiviert, um diese positiven Eigenschaften im QD-Laser-Bauelement nutzen zu können.

Während Bauelemente mit QW-Strukturen (z.B. als aktives Material von Laser-Dioden (LDs)) längst kommerziell verfügbar sind, befinden sich Bauelemente basierend auf quasi null- (QD) oder quasi eindimensionalen (Quantum Wire / Quantum Dash (QDash)) Strukturen noch im Stadium intensiver Forschung. Beflügelt durch die rasante Zunahme der Forschung an Quantenstrukturen im Bereich der Optoelektronik entstand auch in anderen Forschungsgebieten, wie der Quanteninformationstechnologie, reges Interesse an Halbleiter-Quantenstrukturen. Ziel der Quanteninformationstechnologie ist die Nutzbarmachung quantenmechanischer Zustände zur Informationsübertragung und -verarbeitung. Die Möglichkeit einer abhörsicheren Informationsübertragung verschlüsselter Informationen kann beispielsweise durch die Quantenkryptographie erreicht werden. Überträgt man den zur Decodierung benötigten Schlüssel mittels Einzel-Photonenquellen kann ein unbemerktes Abhören des Decodierungs-Schlüssels durch Lauscher prinzipiell verhindert werden [Bo00]. Die Möglichkeit, Quantenstrukturen als Quellen für die Emission einzelner Photonen zu verwenden, konnte bereits erfolgreich demonstriert werden [Mi00]. Derzeit wird intensiv an der Optimierung von Quantenstrukturen für Einzel-Photonenquellen gearbeitet, die z.B. bei Raumtemperatur operieren können und hochbitratige Übertragungsgeschwindigkeiten zulassen [Re04]. Für Anwendungen im Bereich des Quantencomputing werden u.a. gekoppelte Halbleiter-Quantenpunkte sowie Kernspins und ihre Wechselwirkungen mit dem Elektronensystem untersucht [Aw02]. Die Möglichkeit, mehrere Quantenstrukturen zu einem sog.

Quantenmolekül zu verkoppeln, ist dabei von besonderer Bedeutung. Die elektrischen und optischen Eigenschaften gekoppelter Quantenstrukturen sind Gegenstand aktueller Forschung.

Neben vielen anderen Ansätzen und Ideen zur Herstellung kleinster Quantenstrukturen bietet sich zur Herstellung von Quantenstrukturen die Möglichkeit der Selbstorganisation an. Bei dieser Herstellungsmethode wächst man epitaktisch Halbleitermaterialien unterschiedlicher Gitterkonstante übereinander. Danach kann es unter bestimmten Voraussetzungen ab einer kritischen Schichtdicke durch Gitterrelaxation zu einem 3-D-Wachstum des verspannten Halbleitermaterials kommen, wodurch sich selbstorganisiert unterschiedlichste Morphologien von Quantenstrukturen ausbilden können [Vo26, St38]. Durch die prinzipiell sehr einfache Herstellbarkeit von Quantenstrukturen in Halbleiterschichten durch das sog. „selbstorganisierte Wachstum“ kam diesem Verfahren in den letzten Jahren ein immenser Stellenwert in der Forschung zu [Bi99, Mi03, St04]. Der große Vorteil der Selbstorganisation – das eigenständige Wachstum von hochwertigen Quantenstrukturen – kann aber zugleich auch den Nachteil mit sich bringen, dass dieses Bottom-up-Herstellungsprinzip zunächst einmal weniger direkte Einflussmöglichkeiten auf die Größe und Form der Strukturen zulässt. Essenziell für das Verständnis der elektrischen und optischen Eigenschaften (gekoppelter oder ungekoppelter) selbstorganisierter Quantenstrukturen ist letztlich die Kenntnis der Morphologie und der chemischen Zusammensetzung der hergestellten Strukturen. Um gezielt Quantenstrukturen für bestimmte Zwecke herstellen zu können, ist daher ein entsprechendes Feedback notwendig.

Die Analytik überwachener selbstorganisierter Quantenstrukturen verlangt den Einsatz von Mikroskopen mit chemisch sensitiven Messmethoden und mit einem räumlichen Auflösungsvermögen deutlich unterhalb der zu untersuchenden Strukturgröße (also im Subnanometerbereich). Zum Erreichen dieser besonders guten Ortsauflösung bieten sich nur wenige mikroskopische Messmethoden an: Mittels der Raster-Tunnelmikroskopie (RTM) konnten von Ulloa et al. die Morphologie von überwachsenen InAs-QD-Strukturen auf (311)-orientiertem InP-Substrat bestimmt werden [Ul07]. Untersuchungen mit RTM von Offermans et al. an InAs QD-Strukturen (eingebettet sowohl in GaAs als auch in AlAs) ermöglichten u.a. die direkte Abbildung der Wetting Layer [Of05]. Problematisch bei der Raster-Tunnelmikroskopie ist allerdings, dass die relevanten Quantenstrukturen ausschließlich an freigelegten (Spalt-)Kanten (also an Oberflächen) untersucht werden können. Die Transmission eines Elektronenstrahls durch

den Halbleiterkristall im RTEM hingegen bietet die Möglichkeit, lokale Messungen an eingebetteten Quantenstrukturen durchzuführen. Die Quantenstrukturen können daher nach dem eigentlichen Wachstum stets in allen drei Raumrichtungen von der einbettenden Kristallmatrix umschlossen bleiben. Mit (Raster-)Transmissionselektronenmikroskopen ist es zudem möglich, sehr zeitnah eine statistisch relevante Anzahl von Messungen an Nanostrukturen mit unterschiedlichen Messmethoden durchzuführen. Ein Raster-Transmissionselektronenmikroskop (RTEM) bietet (im Gegensatz zum reinen Transmissionselektronenmikroskop) typischerweise die Möglichkeit, sowohl chemisch sensitive als auch strukturell abbildende Methoden synchron anzuwenden. Die Ortsauflösung liegt üblicherweise im Bereich einiger Ångström, wobei Raster-Transmissionselektronenmikroskope neuester Generation bereits Auflösungen im Sub-Ångströmbereich erreichen. Nellist et al. entwickelten hierzu ein linsenfehlerkorrigiertes RTEM mit einem Auflösungsvermögen von 0.06 nm (0.6 Ångström) [Ne04].

Mit einem RTEM hat man demzufolge die Möglichkeit eines direkten messtechnischen Zugangs auf die morphologischen, strukturellen und chemischen Eigenschaften selbstorganisierter Quantenstrukturen. Speziell In(Ga)As-Quantenstrukturen zeichnen sich hier durch eine Reihe interessanter Eigenschaften aus. Beispielsweise lassen sich relativ leicht kohärente (versetzungsfreie) Quantenstrukturen herstellen, was im Hinblick auf viele praktische Anwendungen von Vorteil ist [Ma01a]. Hohe Ladungsträgerbeweglichkeiten ermöglichen prinzipiell hochfrequente Anwendungen [Sa02]. Des Weiteren spricht für die Attraktivität von In(Ga)As-Quantenstrukturen die spektrale Abdeckung der beiden wichtigen optischen Fenster (um 1.3 μm und 1.55 μm) für die Datenübertragung über Glasfasernetze.

Wichtige Fragestellungen (wie die geometrischen Abmaße, die Morphologie oder der Einfluss bestimmter Wachstumsparameter) bezüglich In(Ga)As-Quantenstrukturen konnten mit (Raster-)Transmissionselektronenmikroskopen bereits erfolgreich beantwortet werden. So bestimmten Crozier et al. mittels RTEM die geometrischen Abmaße überwachsender $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ -QD-Strukturen und die Dicke deren Wetting Layer. Die Morphologie InGaAs-überwachsender InAs-QDash-Strukturen konnte mittels hochauflösender RTEM-Aufnahmen von Balakrishnan et al. bestimmt werden [Ba04]. Die Auswirkungen von Wachstumspausen auf die Strukturgröße von InAs-QD-Strukturen wurden mittels TEM von Sales et al. beobachtet [Sa07]. Es zeigte sich in diesen Untersuchungen, dass Wachstumspausen (zwischen 40 s und 80 s) die Größe der entstehenden QD-Strukturen und die Wachstumsdichten direkt beeinflussten. Neben der

Abbildung und dem Vermessen kleinster Strukturen besteht zudem die Möglichkeit, eine quantitative chemische Analyse auf einer Nanometerskala durchzuführen. Mittels einer spektroskopischen Apparatur zur Bestimmung des Elektronenenergieverlusts können im RTEM orts aufgelöst (Ortsauflösung 1-2 nm) chemische Materialkompositionen mit hoher Genauigkeit (elementabhängig, ca. 1-2 %) bestimmt werden. Hierzu demonstrierten Crozier et al. die Möglichkeit, mittels Elektronenenergieverlustspektroskopie (EELS) im RTEM die mittlere Materialkomposition der Wetting Layer von $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ -QD-Strukturen bestimmen zu können [Cr01]. Trotz dieser vielversprechenden Möglichkeiten und einiger, teilweise sehr aufschlussreicher, veröffentlichter RTEM-Studien besteht in der Analytik von Quantenstrukturen akuter Forschungsbedarf. Insbesondere die chemisch sensitiven Möglichkeiten der Raster-Transmissionselektronenmikroskopie sind bislang nicht ausgeschöpft worden, obwohl speziell die EELS-Methode das Potential zur Beantwortung wichtiger Fragestellungen hat (wie die angesprochenen Untersuchungen von Crozier et al. an $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ -QD-Strukturen bereits demonstrierten [Cr01]). Es eröffnet sich die Möglichkeit der Nanoanalytik an selbstorganisierten $\text{In}(\text{Ga})\text{As}$ -Quantenstrukturen vor dem Hintergrund eines besseren theoretischen Verständnisses der Wachstumsvorgänge bei einer Vielzahl bisher nicht (systematisch) untersuchter Quantenstrukturen.

Ziel dieser Arbeit ist es, mit den Methoden der Raster-Transmissionselektronenmikroskopie das Wachstum selbstorganisierter $\text{In}(\text{Ga})\text{As}$ -Quantenstrukturen zu analysieren. Konkret soll u.a. untersucht werden, wie sich eine Änderung der relativen Verspannung im Materialsystem $\text{In}(\text{Ga})\text{As}/\text{GaAs}$ auf die sich ergebende Quantenstruktur-Morphologie (quasi nulldimensional oder quasi eindimensional) auswirkt. Entstehen Quantenstrukturen in mehreren vertikal dicht übereinander angeordneten Wachstumslagen, stellt sich die Frage, ob dünne Barrierschichten die Morphologie oder die chemische Zusammensetzung gekoppelter Quantenstrukturen beeinflussen. Speziell die bislang in der Erforschung selbstorganisierter $\text{In}(\text{Ga})\text{As}$ -Quantenstrukturen kaum systematisch genutzte, chemisch quantitative, Analysemethode EELS soll zur Beantwortung dieser und anderer Fragestellungen eingesetzt werden.

Durch die sehr gute Ortsauflösung des RTEMs können zudem wichtige morphologische und strukturelle Untersuchungen durchgeführt werden. So kann beispielsweise lokal die tatsächliche vertikale Wachstumsposition einer QD-Struktur ermittelt werden, die in eine InGaAs -QW-Struktur eingebettet ist (sogenannte „Dot in a Well“-Struktur). Des Weiteren soll in dieser Arbeit mit dem RTEM experimentell untersucht werden, wie sich essentielle Wachstumsparameter (wie z.B. die nominelle

InAs-Menge selbstorganisierter InAs-Quantenstrukturen) auf die Größe, die Form und die chemische Zusammensetzung selbstorganisierter Quantenstrukturen auswirken. Sämtliche Untersuchungen der experimentell ermittelten strukturellen, morphologischen und chemischen Eigenschaften werden vor dem Hintergrund möglicher Optimierungen der jeweiligen Quantenstrukturen durchgeführt. Die Arbeit gliedert sich wie folgt:

- Kapitel 2 erläutert die wesentlichen Grundlagen des eingesetzten Raster-Transmissionselektronenmikroskops. Hierzu werden zunächst die wesentlichen physikalischen Effekte der angewandten Messmethoden vorgestellt. Darauf aufbauend werden anhand exemplarisch ausgewählter Messungen die unterschiedlichen Messmethoden skizziert. Der konkrete Aufbau des verwendeten Messsystems wird abschließend erläutert.
- Kapitel 3 befasst sich mit den wichtigsten Fakten der Herstellung selbstorganisierter Halbleiter-Quantenstrukturen. Unterschiedliche Quantenstruktur-Morphologien und deren Entstehung durch die speziellen Verfahren werden vorgestellt. Anschließend wird auf die besonders aufwändige Probenpräparation der Quantenstrukturproben eingegangen, die für mikroskopische Untersuchungen mittels RTEM nötig ist.
- Die optimale Struktur von „Dot in a Well“-Strukturen durch Variation der unteren Quantum Well-Schicht wird in Kapitel 4 untersucht. Die tatsächliche vertikale Lage der QD-Struktur im einbettenden QW wird mittels Helligkeitsprofilen von Z-Kontrastaufnahmen bestimmt. Die mikroskopischen Ergebnisse der untersuchten Proben werden Photolumineszenzspektren gegenübergestellt.
- Der Einfluss der Schichtdicke der Barriere zwischen Quantum Dots, die mit „Vertical Stacking“ hergestellt wurden, ist Gegenstand der Untersuchungen in Kapitel 5. Analysiert wird sowohl der Einfluss der Barrierenschichtdicke auf die vertikale Korrelation der Wachstumsposition, als auch auf die Größe der Quantum Dots und deren chemische Zusammensetzung.

- In Kapitel 6 wird der Einfluss der Verspannung auf die Bildung selbstorganisierter Quantenstrukturen untersucht. Hierzu wird bei der selbstorganisierten Bildung von Quantenstrukturen im Materialsystem InGaAs/GaAs systematisch der In-Gehalt und damit die Verspannung variiert. Die sich ergebenden unterschiedlichen Morphologien werden mit den abbildenden und den chemisch sensitiven Methoden der Raster-Transmissionselektronenmikroskopie analysiert.
- Einer der wichtigsten Parameter von Quantenstrukturen – die Größe – wird in Kapitel 7 untersucht. Vorgestellt wird eine sehr pragmatische Möglichkeit, selbstorganisierte Quantum Dashes durch die Variation lediglich eines Wachstumsparameters über einen weiten Bereich in Größe und Form zu kontrollieren. Die hergestellten Quantum Dashes werden hinsichtlich Größe, Morphologie und chemischer Zusammensetzung analysiert.

2 Grundlagen der Raster-Transmissions-mikroskopie

Die Analytik an Nanostrukturen verlangt den Einsatz von Mikroskopen mit einem räumlichen Auflösungsvermögen deutlich unterhalb der zu untersuchenden Strukturgröße - also im Fall von Quantenstrukturen im Subnanometerbereich. Sollen zudem möglichst zeitnah eine statistisch relevante Anzahl von Messungen durchgeführt werden, bietet sich hierzu die Raster-Transmissionselektronenmikroskopie als Analyse-Werkzeug an, sie weist üblicherweise Ortsauflösungen im Bereich einiger Ångström (0.1 nm) auf. Neben der morphologischen und strukturellen Analyse ist des Weiteren die chemische Komposition der oft nur wenige Nanometer kleinen Objekte von großem Interesse. Diese Anforderungen können von einem Raster-Transmissionselektronenmikroskop (RTEM) erfüllt werden, das zusätzlich mit einer spektroskopischen Apparatur zur Bestimmung des Elektronenenergieverlusts ausgestattet ist. Damit ist es möglich, den chemischen Gehalt %genau zu bestimmen. Die mikroskopische Analytik im Rahmen dieser Arbeit wurde daher mittels eines RTEMs mit kalter Feldemissionskathode und 100kV Beschleunigungsspannung durchgeführt.

In den folgenden Unterkapiteln werden die essentiellen Grundlagen zur Raster-Transmissionselektronenmikroskopie vorgestellt. Im Unterkapitel 2.1 werden dazu zunächst die relevanten physikalischen Effekte zusammengefasst, die durch die Wechselwirkung des hochenergetischen Elektronenstrahls mit der Probe entstehen. Im anschließenden Unterkapitel 2.2 werden hierauf aufbauend die auf diesen Wechselwirkungen beruhenden Meßmethoden erläutert. Der konkrete Aufbau und die praktische Funktionsweise des verwendeten Messsystems werden abschließend in Unterkapitel 2.3 zusammengefasst.

2.1 Physikalische Grundlagen der Raster-Transmissionsmikroskopie

In einem RTEM wird prinzipiell ein fokussierter hochenergetischer Elektronenstrahl als Sonde über das zu untersuchende Probengebiet geführt. Die Detektion durch die Probe transmittierter Elektronen ist von besonderem Interesse. Die zu untersuchenden Proben müssen hierzu besonders dünn präpariert werden (z.B. < 45 nm), um eine fast vollständige Transmission des Elektronenstrahls zu ermöglichen. Die auftretenden relevanten Wechselwirkungen des hochenergetischen Elektronenstrahls mit der Probe werden im Folgenden erläutert.

2.1.1 Sonde-Probe-Wechselwirkung im RTEM

Treffen Primärelektronen mit der Energie E_0 auf eine dünne Probe, können unterschiedliche physikalische Effekte hervorgerufen werden. Die wichtigsten Wechselwirkungsprodukte sind schematisch in Abb. 2.1 skizziert. Typischerweise unterscheidet man zwischen primären und sekundären Wechselwirkungsprodukten: Primäre Wechselwirkungsprodukte sind die Elektronen des Primärelektronenstrahls, die die Probe wieder verlassen konnten. Diese Primärelektronen können in der Probe Wechselwirkungen in Form von (in-)elastischer Richtungsänderung, (Rück-)Streuung,

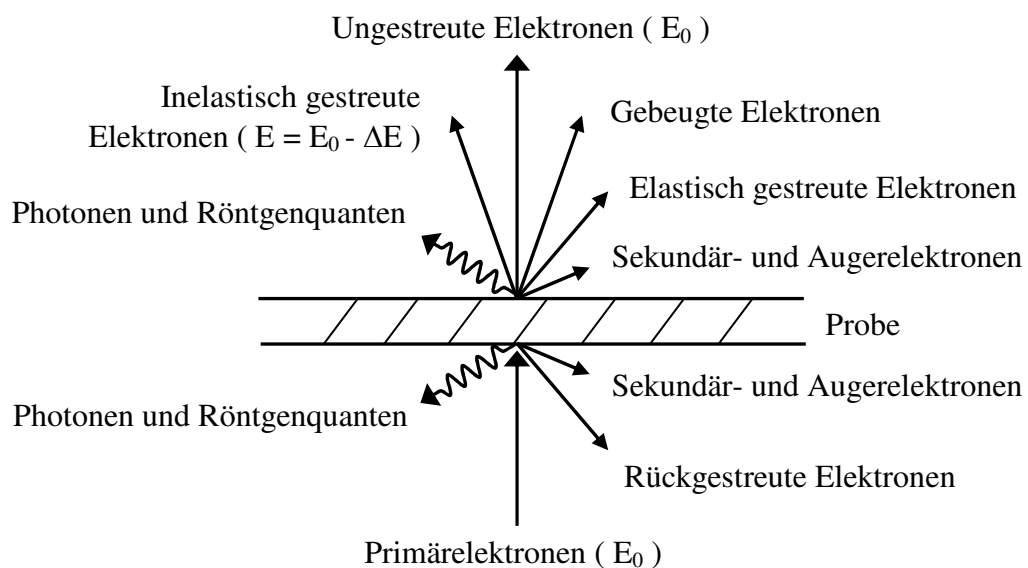


Abb. 2.1 Wechselwirkung zwischen Elektronenprobe und Probe

Beugung oder Energieverlust erfahren haben. Sie können aber auch ohne signifikante Beeinflussung bleiben. Als sekundäre Wechselwirkungsprodukte bezeichnet man u.a. Photonen und Röntgenquanten sowie Auger- und Sekundärelektronen, die erst als Folge von Anregungsprozessen des hochenergetischen Elektronenstrahls den Festkörper verlassen konnten. Von besonderem Interesse für die Nanoanalytik im RTEM sind die transmittierten Primärelektronen, da die Auswertung dieser Elektronen morphologische und chemische Untersuchungen der Probe mit einem Auflösungsvermögen im Bereich einiger Ångström ermöglichen.

2.1.1.1 Ungestreute Elektronen

Ungestreute Elektronen erfahren bei der Transmission durch die Probe weder eine Energie- noch eine Richtungsänderung. Sie enthalten keine quantitative Information über die chemische Zusammensetzung der Proben. Da die Anzahl der transmittierten ungestreuten

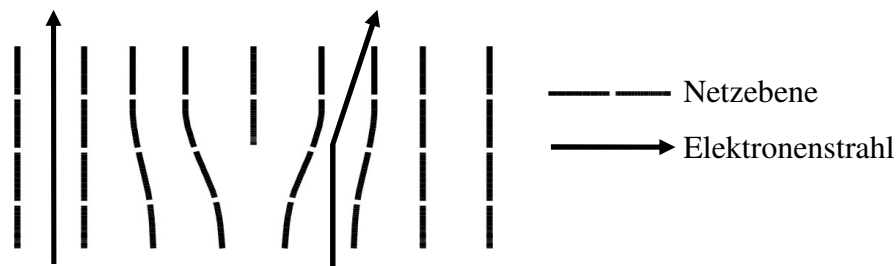


Abb. 2.2 Prinzip der Streuung des Elektronenstrahls an einer Stufenversetzung

Elektronen aber je nach Zusammensetzung und kristalliner Struktur der Probenstelle stark variiert, kann aus der Intensität der ungestreuten Elektronen vor allem auf Änderungen bzw. Unregelmäßigkeiten im Kristallgitter, wie z.B. Verspannungen, Versetzungen oder Stapelfehler, geschlossen werden. Wie in Abb. 2.2 schematisch dargestellt ist, können z.B. am Ort einer Stufenversetzung deutlich weniger Elektronen die Probe ungestreut durchqueren.

2.1.1.2 Elastisch gestreute Elektronen

Bei der elastischen Streuung von Elektronen bleibt die Energie des gestreuten Elektrons quasi unverändert, lediglich seine Bewegungsrichtung ändert sich. Ursache für die elastische Elektronenstreuung ist im Wesentlichen das elektrostatische Coulombfeld der Atomkerne in der Probe, das eine anziehende Kraft auf die Elektronen bewirkt. Formell

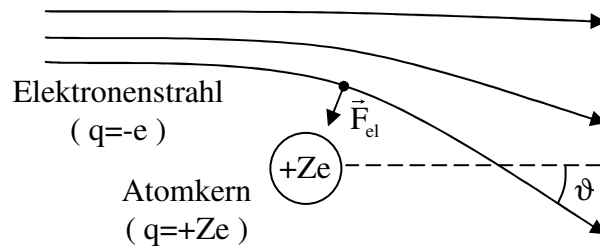


Abb. 2.3 Prinzip der elastischen Streuung am Atomkern für drei Elektronenstrahlen mit unterschiedlichem Abstand zwischen Elektronenstrahl und Atomkern

kann die Intensität und die räumliche Verteilung durch den differentiellen Wirkungsquerschnitt $d\sigma/d\Omega$ beschrieben werden. Eine gute Approximation für den differentiellen Wirkungsquerschnitt in Abhängigkeit vom Streuwinkel ϑ der Elektronen im RTEM gibt die in Gl. (2.1) gegebene Rutherfordsche Streuformel [Ru11]:

$$\frac{d\sigma(\vartheta)}{d\Omega} = \frac{Z^2 e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 4E_0^2 \sin^2(\vartheta/2)} \quad (2.1)$$

Z steht hierbei für die Ordnungszahl (und somit auch für die Kernladung) der Probenelemente und E_0 steht für die Primärelektronenenergie. Die quadratische Z-Abhängigkeit bewirkt, dass die Primärelektronen an Probenelementen höherer Ordnungszahl vermehrt in größere Streuwinkel gestreut werden. Die Rutherfordsche Streuformel wird bei kleineren Streuwinkeln aufgrund der Vernachlässigung der Abschirmung des Kernpotentials durch die Elektronenhülle allerdings zunehmend ungenau. Zur exakteren Berechnung der Streuung eignet sich der Mott-Streuquerschnitt [Mo33], der die Abschirmung des Kernpotentials durch entsprechende Abschirmparameter, relativistische Effekte und zudem den Elektronenspin berücksichtigt.

2.1.1.3 Inelastisch gestreute Elektronen

Durch Wechselwirkungseffekte können die transmittierten Primärelektronen in der Probe Energie abgeben und hierbei inelastisch gestreut werden. Die hochenergetischen Primärelektronen in einem RTEM können neben Stoß- und Erhitzungseffekten u.a. Anregungseffekte in der Probe verursachen, die im Folgenden betrachtet werden: Ist die Anregungsenergie durch den hochenergetischen Elektronenstrahl groß, kann eine

Wechselwirkung des Elektronenstrahls mit der Probe dazu führen, dass Elektronen aus den Atomschalen herausgelöst werden. Sofern die Anregungsenergie groß genug ist, können die Schalelektronen durch diesen Energieübertrag auf das nächst höhere freie Energieniveau oder auch bis zum Vakuumniveau angehoben werden. Zusätzliche Energie kann den Schalelektronen in Form von kinetischer Energie mitgegeben werden. Die Energie eines hochenergetischen Primärelektrons im RTEM reicht prinzipiell dazu aus, Elektronen aus äußeren sowie den innersten Atomschalen anzuregen. Mit dieser Anregung gehen, neben dem bereits erwähnten Energieverlust der Primärelektronen, verschiedene Rekombinations- und Relaxationsprozesse einher. So können bei Elektronen-Energieverlusten u.a. Photonen, Röntgenquanten oder auch Augerelektronen generiert werden. Da die Bindungsenergien der Elektronen für verschiedene Elemente unterschiedlich und genauestens bekannt sind, enthält somit der transmittierte Primärelektronenstrahl elementspezifische Informationen über die Probe durch inelastische Streuung.

2.1.1.4 Gebeugte Elektronen

Wird eine Welle an (periodischen) Strukturen abgelenkt, spricht man von Beugung. Diesen Effekt erfahren aufgrund des Welle-Teilchen-Dualismus auch die Primärelektronen des RTEM in periodisch aufgebauten kristallinen Proben. Die entsprechende de Broglie-Wellenlänge λ der Elektronen kann, abhängig von der kinetischen Energie der Elektronen E_{kin} , (bzw. abhängig vom Impuls p) gemäß Gl. (2.2)

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h \cdot c_0}{\sqrt{E_{\text{kin}} \cdot (E_{\text{kin}} + 2E_{\text{R}})}} \quad (2.2)$$

zugeordnet werden. E_{R} steht für die Ruheenergie eines Elektrons. Beispielsweise besitzen nach de Broglie mit 100keV beschleunigte Elektronen eine Wellenlänge von ca. 3.7pm. Aufgrund von Überlagerungen der kohärent gestreuten Elektronenwellen im periodisch aufgebauten Kristallgitter kommt es zu konstruktiver (und destruktiver) Interferenz des Elektronenstrahls in bestimmten Raumrichtungen. Intensitätsmaxima entstehen, wenn die Bragg-Bedingung (Gl.(2.3))

$$n \cdot \lambda = 2d_{\text{hkl}} \cdot \sin \vartheta \quad (2.3)$$

erfüllt ist, da die Elektronenwellen konstruktiv interferieren (n entspricht einem ganzzahligen Wert). Im Falle konstruktiver Interferenz verlängert sich so der Weg der Elektronen durch die Probe (mit einem Netzebenenabstand d_{hkl}) um z.B. eine ganze Wellenlänge λ gegenüber der direkt reflektierten Elektronenwelle (Einfallswinkel stets ϑ ; schematisch dargestellt in Abb. 2.4). Destruktive Interferenz entstünde bei Verschiebung um eine halbe Wellenlänge. Mathematisch betrachtet können die so erzeugten Beugungsmuster durch die dreidimensionale Fourier-Transformation der geometrischen

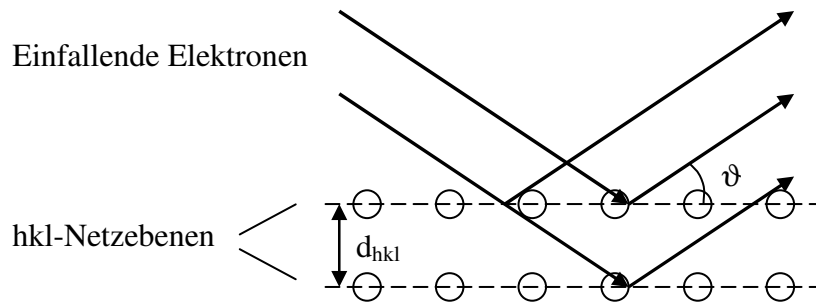


Abb. 2.4 Schematische Darstellung der Bragg-Beugung an hkl-Netzebenen

Anordnung der Atome im Kristall beschrieben werden. Zur theoretischen Handhabung der Elektronenbeugung im Kristallgitter wird das reziproke Gitter eingeführt [Wi96]. Die Basisvektoren des reziproken Raums werden zweckmäßigerweise nach Gl.(2.4) aus den Basisvektoren \vec{a}_i ($i=1,2,3$) des Kristallgitters im Ortsraum gebildet:

$$\vec{a}_1^* = \frac{\vec{a}_2 \times \vec{a}_3}{\vec{a}_1(\vec{a}_2 \times \vec{a}_3)}; \quad \vec{a}_2^* = \frac{\vec{a}_3 \times \vec{a}_1}{\vec{a}_2(\vec{a}_3 \times \vec{a}_1)}; \quad \vec{a}_3^* = \frac{\vec{a}_1 \times \vec{a}_2}{\vec{a}_3(\vec{a}_1 \times \vec{a}_2)} \quad (2.4)$$

Der reziproke Gittervektor \vec{g}_{hkl} lautet somit wie folgt:

$$\vec{g}_{hkl} = h\vec{a}_1^* + k\vec{a}_2^* + l\vec{a}_3^* \quad (2.5)$$

Hierbei ist der Betrag des reziproken Gittervektors gleich dem reziproken Abstand der hkl-Netzebenen, der wiederum durch die Millerindizes (h,k,l) und die Gitterkonstante a berechnet werden kann:

$$|\vec{g}_{hkl}| = \frac{1}{d_{hkl}} = \frac{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}{a} \quad (2.6)$$

Bei einfallendem Elektronenstrahl in Richtung \vec{k}_0 treten somit Bragg-Reflexe in den Richtungen \vec{k} auf, für die Gl.(2.7) erfüllt ist [Wi96]:

$$\vec{k} - \vec{k}_0 = \vec{g}_{hkl} \quad (2.7)$$

Basierend auf diesen Gleichungen kann zur Indizierung von Beugungsaufnahmen eine graphische Konstruktion im reziproken Raum mit Hilfe der sogenannten Ewaldkugel durchgeführt werden (siehe Abb. 2.5). Schneidet die Ewaldkugel (graphische Darstellung von $\vec{k} - \vec{k}_0$) einen reziproken Gitterpunkt, so ist die Bragg-Bedingung erfüllt und der

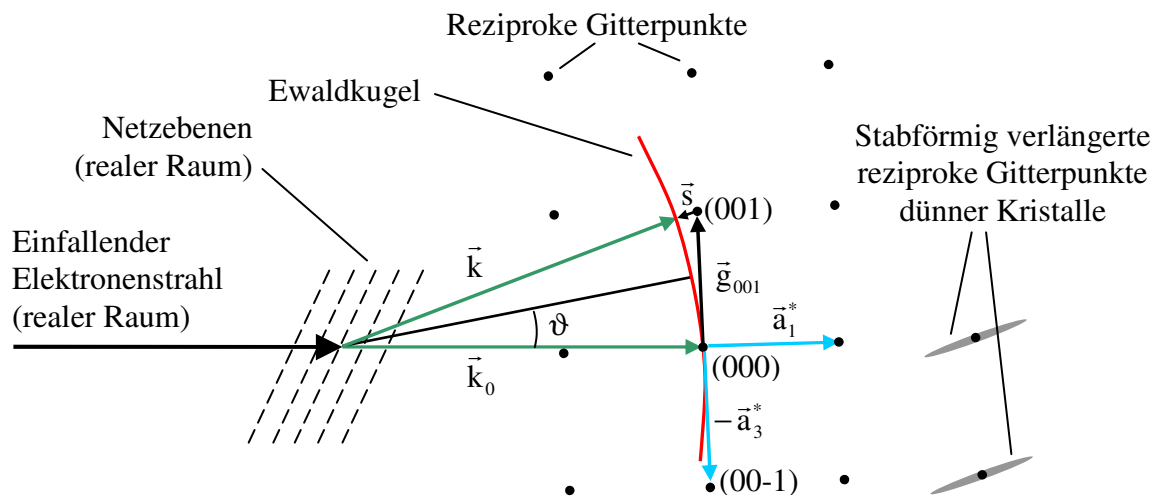


Abb. 2.5 Zweidimensionaler Schnitt des, durch reziproke Basisvektoren (blau) definierten, reziproken Raums mit eingezeichneter Ewaldkugel (rot). Zur Illustration sind symbolisch die Netzebenen und der einfallende Elektronenstrahl des realen Raums skizziert. Den Einfluss von dünnen Kristallen auf die geometrische Form reziproker Gitterpunkte verdeutlichen die (grau) eingezeichneten stabförmig verlängerten reziproken Gitterpunkte

entsprechende Bragg-Reflex kann angeregt werden. Die in Abb. 2.5 dargestellten ideal punktförmigen reziproken Gitterpunkte gelten dabei für theoretisch unendlich ausgedehnte Kristalle. Die Abweichung von der idealen Bragg-Bedingung wird durch den Anregungsfehler \vec{s} berücksichtigt. Eine Anregung des jeweiligen Reflexes bei realen Kristallen ist bei einem geringen Betrag des Anregungsfehlers trotzdem möglich, da es bei

endlich ausgedehnten Kristallen um jeden reziproken Gitterpunkt einen Bereich gibt, der (trotz nicht exakter Übereinstimmung von Ewaldkugel mit reziproken Gitterpunkt) eine Anregung des jeweiligen Reflexes sogar sehr wahrscheinlich macht. Speziell in der Transmissions-Elektronenmikroskopie werden sehr dünne (z.B. < 45 nm) Kristalle untersucht. Diese Einschränkung im Ortsbereich der Probe führt im reziproken Raum zu stabförmig verlängerten (siehe Abb. 2.5) Gitterpunkten [Wi96]. Eine geringe Abweichung von der exakten Bragg-Bedingung führt somit in dünnen Proben trotzdem zur Anregung eines Bragg-Reflexes. So wird beispielsweise in Abb. 2.5 der – von der Ewaldkugel nicht exakt erreichte – reziproke Gitterpunkt (001), unter Berücksichtigung des Anregungsfehlers \vec{s} , in einem dünnen Kristall trotzdem zur Anregung des entsprechenden zugehörigen Bragg-Reflexes führen. Es treten daher in gedünnten Kristallen prinzipiell mehr Bragg-Reflexe auf als in gleichen Volumenkristallen. Mittels der sogenannten dynamischen Streutheorie kann für dünne Proben die Winkelverteilung und die Intensität der angeregten Bragg-Reflexe in Abhängigkeit von \vec{s} nach [Hi77] simuliert werden.

2.2 Eingesetzte Charakterisierungs- und Analysemethoden

2.2.1 Die Hellfeld- und Dunkelfeldabbildung

Wie bereits in Unterkapitel 2.1.1.1 erwähnt, variiert die Anzahl der transmittierten ungestreuten Elektronen mit der Kristallstruktur. Besonders starken Einfluss auf die Intensität der ungestreuten Elektronen bewirken Abweichungen vom perfekt periodisch

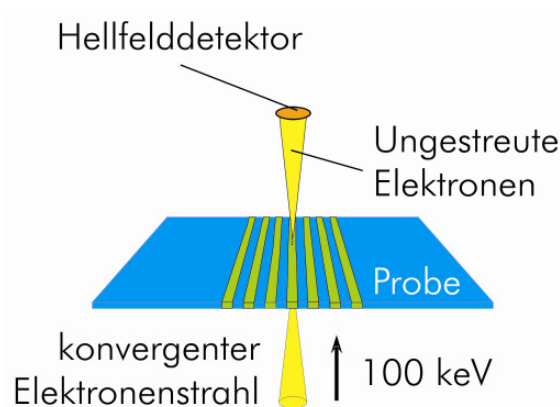


Abb. 2.6 Prinzipbild zur Hellfeld-Abbildung

aufgebauten Kristallgitter. Diese Abhängigkeit der Signalintensität von Störungen/Unregelmäßigkeiten des Kristallgitters nutzt man in der sogenannten Hellfeldabbildung aus, um einerseits den prinzipiellen Aufbau der Probe abzubilden und andererseits Versetzungen und Verspannungen sichtbar zu machen. Für die Abbildung des Hellfelds wird, wie in Abb. 2.6 schematisch dargestellt, in Strahlrichtung ein Detektor angebracht, der die Anzahl der ungestreuten Elektronen in ein Signal umwandelt. Das in dieser Arbeit verwendete RTEM fängt Elektronen im Winkelbereich unter 10 mrad ein und detektiert und verstärkt diese durch einen Szintillator mit nachgeschaltetem Photomultiplier (sog. Everhart-Thornley-Detektor). Die Auswertung des Signals dieses Detektors liefert ein zweidimensionales intensitätsmoduliertes Signal, das Hellfeldabbildung genannt wird. Der Name „Hellfeld“ deutet an, dass dieses Signal eine verhältnismäßig große Intensität besitzt, da in typischen RTEM-Proben die mittlere freie Weglänge so gewählt ist, dass ein großer Teil des Elektronenstrahls die Probe ungestreut wieder verlassen kann. Nutzt man für die Bildentstehung den Amplitudenkontrast aus, liefert die Hellfeldmethode Auflösungen im Bereich von ca. 0.5 nm. Exemplarisch zeigt Abb. 2.7 ein typisches Hellfeldbild von fünf InAs-QD-Lagen. Der Ort der Quantenpunkte ist in der Hellfeldaufnahme anhand der dunklen Doppelstreifen zu erkennen (z.B. innerhalb der blauen Ellipse in Abb. 2.7; Die Ursache der Entstehung dieses „Dunkel-hell-dunkel“-Effekts bei der Hellfeld-Abbildung der QDs wird in Abschnitt 6.2 näher diskutiert). Des Weiteren sind in der Hellfeldaufnahme in Abb. 2.7 Gebiete mit Versetzungen deutlich zu erkennen (siehe rote Pfeile).

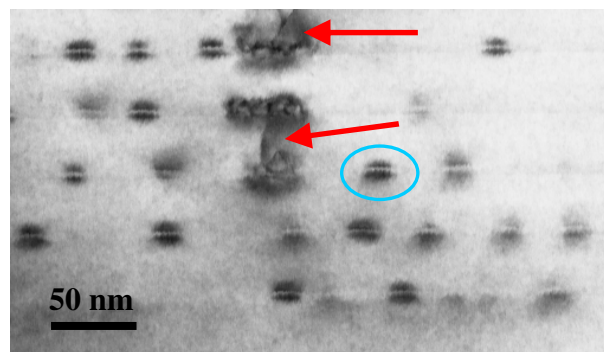


Abb. 2.7 Hellfeldaufnahme von InAs-QDs (Markierung eines QDs durch eine blaue Ellipse) und von Versetzungen (markiert durch rote Pfeile)

Weiterhin besteht die Möglichkeit, den Elektronenstrahl ein wenig aufzuweiten, so dass sich verschiedene Beugungsscheibchen des transmittierten Strahls überlappen. Durch kohärente Überlagerung der Bragg-Reflexe kann die Phasenänderung der Elektronenwelle an den Netzebenen abgebildet werden. Die Ausnutzung dieses Phasenkontrasts ermöglicht subatomare Hochauflösungs-Hellfeldabbildungen [Re97].

In Beugungsbildern findet man die ungestreuten Elektronen des Hellfelds im [000]-Beugungsreflex wieder. Betrachtet man andere Beugungsreflexe als den [000]-Reflex, so werden die sich ergebenden Abbildungen als Dunkelfeldabbildung bezeichnet. Durch die unterschiedliche Position der Bragg-Reflexe bieten Dunkelfeldaufnahmen prinzipiell das

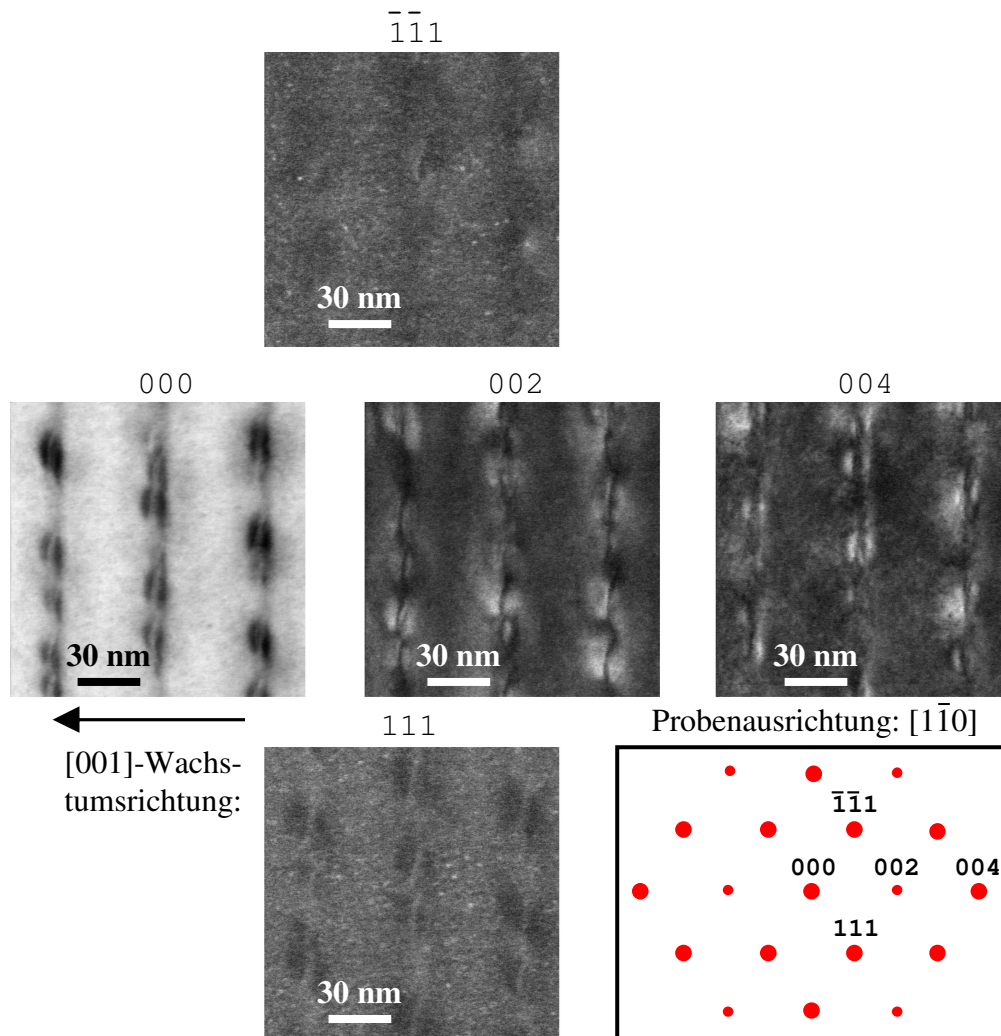


Abb. 2.8 Ausgewählte Hellfeld- und Dunkelfeldaufnahmen von QDs mit Wachstumsrichtung [001]. Inset rechts unten: Simulation der möglichen auftretenden Bragg-Reflexe für ein $\text{In}_{(1-x)}\text{Ga}_x\text{As}$ -Zinkblende-Gitter. Die Dicke der Punkte deutet die Stärke des Bragg-Reflexes an

Potenzial weitere Informationen über die Probe zu gewinnen. Beispielsweise ermöglicht der [002]-Reflex (siehe auch Abb. 2.8, Inset) einen Rückschluss über die Anwesenheit von In in GaAs, da dieser Reflex unterschiedlich stark in den jeweiligen Verbindungshalbleitern InAs und GaAs auftritt [Ch03]. Typische Hellfeld- und Dunkelfeldaufnahmen eines Probenbereichs zeigt Abb. 2.8. Zu erkennen ist, dass in diesem Fall die Dunkelfeldaufnahmen der Bragg-Reflexe [002] und [004] ein quasi inverses Abbild der Hellfeldaufnahme sind. Die in der Hellfeldaufnahme „fehlenden“ ungestreuten Elektronen werden offensichtlich bevorzugt in diese Richtungen abgelenkt und überlagern das chemisch sensitive Verhalten des [002]-Beugungsreflexes. Die Dunkelfeldaufnahmen der $[\bar{1}\bar{1}1]$ - und $[111]$ -Reflexe zeigen hingegen vergleichsweise keinen so starken Bildkontrast. Eine bessere Möglichkeit im RTEM chemisch qualitative Abbildungen einer Probe zu detektieren, bietet die im folgenden Abschnitt vorgestellte Z-Kontrastmethode.

2.2.2 Die ordnungszahlsensitive Z-Kontrast-Abbildung

Von herausragender Bedeutung für die Raster-Transmissionselektronenmikroskopie ist die Möglichkeit ordnungszahlsensitiv abzubilden, was im Allgemeinen im TEM so nicht möglich ist. Basierend auf der Detektion elastisch gestreuter Elektronen im Rasterbetrieb lassen sich Mikroskopbilder aufnehmen, deren Bildkontrast in erster Näherung ausschließlich durch den Ordnungszahlunterschied des untersuchten Gebiets entsteht. Bei entsprechender Detektion der elastisch gestreuten Primärelektronen mit einem ringförmigen Detektor (siehe Abb. 2.9), können gemäß Kapitel 2.1.1.2 somit die Elektronen zur qualitativen ordnungszahl-sensitiven Abbildung der Probe genutzt werden. Man spricht auch vom chemischen Mapping der Probe. Zur Detektion der elastisch

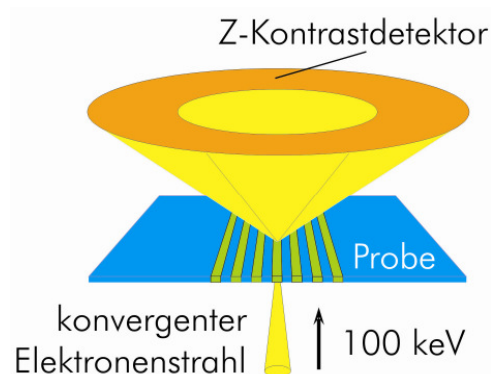


Abb. 2.9 Prinzipbild zur Z-Kontrastabbildung

gestreuten Elektronen (u.a. Rutherford-Streuung, siehe Gl. (2.1)) wird ein ringförmiger Detektor in einem bestimmten Winkelbereich hinter der Probe angebracht. Im verwendeten RTEM werden Elektronen im Winkelbereich zwischen 60 mrad und 180 mrad mittels eines HAADF (High Angle Annular Dark Field) eingefangen und durch einen Everhart-Thornley-Detektor erfasst. Diese Ausnutzung der ordnungszahlabhängigen Intensität in bestimmten Streuwinkeln wird üblicherweise als Z-Kontrast-Abbildung bezeichnet, wobei Z symbolisch für die Ordnungs- bzw. Kernladungszahl eines Elements steht. Wie in der Rutherford'schen Streuformel zu erkennen ist, besteht bei festen Streuwinkeln eine Abhängigkeit, die in erster Näherung quadratisch von der Ordnungszahl abhängt. Die etwas genauere Betrachtung nach [Mo33] ergibt eine prinzipielle Abhängigkeit der Intensität am Detektor von $I \propto Z^{1,5...2}$. Werden beispielsweise Halbleiterlegierungen (z.B. III-V oder II-VI) untersucht, so ergibt sich eine Bildhelligkeit abhängig von der mittleren Ordnungszahl \bar{Z} der Legierung. Vorausgesetzt, die entsprechenden chemischen Elemente stammen aus zwei unterschiedlichen Hauptgruppen des Periodensystems, kann \bar{Z} rechnerisch z.B. für III-V (oder analog für II-VI) Verbindungshalbleiter gemäß Gl.(2.8)

$$\bar{Z} = \frac{1}{2} \sum_{\mu=III}^V \sum_v x_{\mu,v} \cdot Z_{\mu,v} \quad (2.8)$$

bestimmt werden. In Gl.(2.8) bezeichnet hierbei $x_{\mu,v}$ den atomaren Anteil des Elementes mit der Ordnungszahl $Z_{\mu,v}$. Zur Veranschaulichung zeigt Abb. 2.10 eine Z-Kontrast-

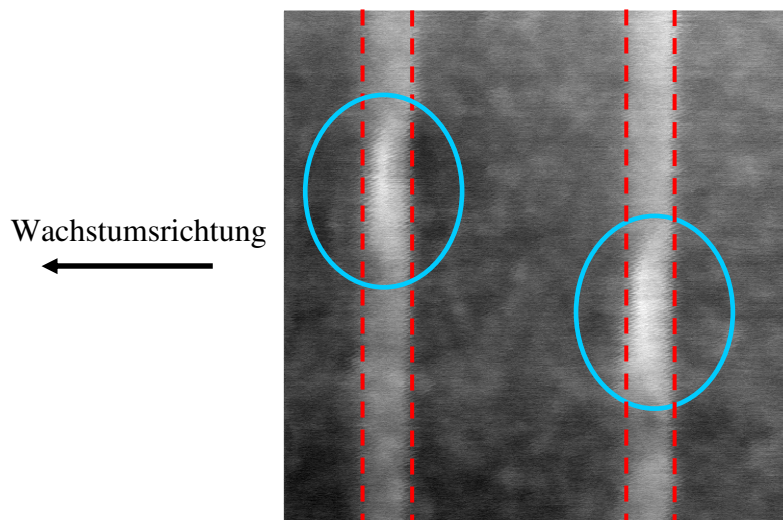


Abb. 2.10 Z-Kontrastaufnahme zweier InAs-QDs (markiert durch blaue Ellipsen) in In_{0.15}Ga_{0.85}As-QWells (durch rot gestrichelte Linien angedeutet) getrennt durch GaAs-Barrieren

aufnahme von zwei InAs-QDs, die jeweils in einen $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ -QWell eingewachsen sind. Die $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ -QWell-Strukturen sind wiederum in GaAs eingebettet. Nach Gl. (2.8) ergeben sich theoretisch mittlere Ordnungszahlen von $\bar{Z} = 41$ (InAs), $\bar{Z} = 33.4$ ($\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$) und $\bar{Z} = 32$ (GaAs). Entsprechend der Abhängigkeit der Intensität bzw. der Bildhelligkeit von der mittleren Ordnungszahl ($I \propto Z^{1.5 \dots 2}$) müssten die QDs die hellsten Objekte im Bild sein, die QWs müssten dunkler als die QDs aber heller als das einbettende GaAs sein und das GaAs wiederum müsste relativ dunkel erscheinen. Ein Vergleich mit Abb. 2.10 zeigt, dass dieses Verhalten in der Z-Kontrastaufnahme wiederzufinden ist. Während also Hellfeld- und Dunkelfeldaufnahmen stark sensitiv bzgl. Verspannungen und Versetzungen sind (siehe vorheriger Abschnitt), sind Z-Kontrastaufnahmen vornehmlich ordnungszahlsensitiv und erlauben ein chemisches Mapping. Nutzt man Channeling-Effekte, also richtet man die Zonenachse des Kristallgitters der Probe in Elektronenstrahlrichtung aus, so können prinzipiell mit der Z-Kontrastmethode atomare Auflösungen (~ 0.2 nm) an Proben mit Dicken von einigen Atomlagen erreicht werden [Wi96, Ca05].

2.2.3 Chemische Analyse mittels Elektronenenergieverlust-Spektroskopie

Neben dem (qualitativen) chemischen Mapping mit der Z-Kontrast-Methode gibt es im (R)TEM die Möglichkeit, eine quantitative chemische Analyse mittels der Elektronenenergieverlust-Spektroskopie (engl. abgekürzt EELS) durchzuführen.

2.2.3.1 Funktionsprinzip EELS

EELS basiert auf der energetischen Dispersion des monoenergetischen Primärelektronenstrahls bei Transmission der Probe. Wie in Abschnitt 2.1.1.3 beschrieben, erfahren die Primärelektronen durch den Energieübertrag auf ein ursprünglich atomar gebundenes Elektron in der Probe einen inelastischen Energieverlust. Dieser Energieverlust des Primärelektrons ist charakteristisch für die energetische Lage einer bestimmten Ionisationskante eines bestimmten Elements in der Probe. Die Intensität der Ionisationskante ermöglicht die Berechnung der Quantität des Elements. Fokussiert man die Elektronensonde nun während einer Messung stationär auf eine Stelle (siehe Abb. 2.11) der Probe, so erhält man lokal orts aufgelöste EELS-Spektren der zu analysierenden Probenstelle. Die Ortsauflösung ist im Allgemeinen materialspezifisch und beträgt ca.

1-2 nm. Die Kombination mehrerer EELS-Einzelmessungen ermöglicht die Erstellung von Line- oder Areascans größerer Probengebiete.

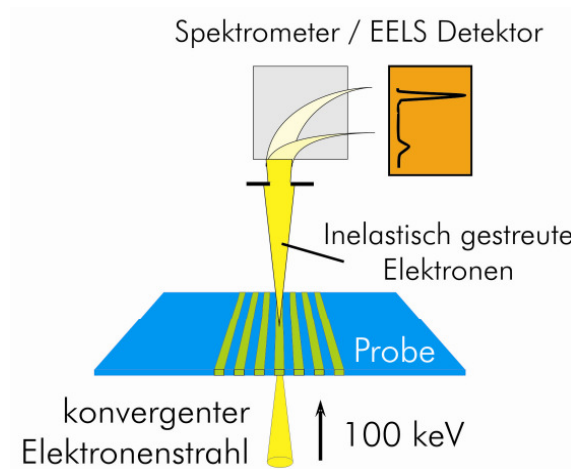


Abb. 2.11 Prinzipbild zur EELS Analysetechnik

Zur Durchführung einer EELS-Analyse müssen die transmittierten Primärelektronen energetisch separiert werden (eine schematische Darstellung des verwendeten Aufbaus zeigt Abb. 2.20). Das in dieser Arbeit eingesetzte energiedispersive Filter beruht auf einem magnetischen Sektorfeld, in dem die Elektronen geführt und räumlich nach unterschiedlichen Energien getrennt werden. Prinzipiell gibt es die Möglichkeit, die Spektren seriell (jeden Energiewert einzeln) oder parallel (Elektronen unterschiedlicher Energien synchron) zu detektieren. In dem in dieser Arbeit verwendeten System wird aufgrund der höheren Effizienz die parallele Detektion der EEL-Spektren angewandt [Br01]. Zur parallelen Detektion muss der Elektronenstrahl nach dem energiedispersiven magnetischen Sektorfeld durch Ablenk- und Quadrupolspulen aufgefächert und umgeformt werden, so dass alle Elektronen eines Energiefensters registriert werden können. Zur besseren Detektion werden anschließend die Elektronen auf einen YAG-Kristall fokussiert, der entsprechend Photonen emittiert, die abschließend von einer CCD-Kamera detektiert werden können. Verschiedene Energieverlustbereiche können untersucht werden, indem das Energiefenster des energiedispersiven Filters mittels einer Vorspannung zwischen 0 eV und 2000 eV (in der sog. Drifttube) verschoben wird. Somit können prinzipiell sämtliche elementspezifischen Ionisationskanten in diesem Energiebereich zur chemischen Analytik herangezogen werden.

2.2.3.2 Das Elektronenenergieverlust-Spektrum und dessen Bedeutung

Das EEL Spektrum (siehe Abb. 2.12) wird üblicherweise abhängig von der Größe des Energieverlusts ΔE in folgende drei Bereiche unterteilt:

1. Der zero-loss Bereich
2. Der low-loss Bereich
3. Der core-loss Bereich

Der erste Bereich wird hauptsächlich durch den sog. Zero-loss-Peak geprägt, der gleichzeitig das intensitätsreichste Signal im gesamten Spektrum darstellt. Der Zero-loss-Peak entsteht vor allem durch die Elektronen, die ungestreut und ohne Energieverlust ($\Delta E \approx 0$ eV) zum Detektor gelangen konnten. Einen weiteren Beitrag zum Zero-loss-Peak bilden elastisch gestreute Elektronen, die nur eine Richtungs- aber keine Energieänderung erfahren haben und Elektronen, die eine Phononanregung ($\Delta E \leq 0.1$ eV) erzeugt haben [Eg96]. Die Form und die Breite des Zero-loss-Peaks werden quasi ausschließlich durch die Elektronenquelle, die Elektronenoptik und das EEL-Spektrometer selbst bestimmt. Die Elektronen des zero-loss Bereichs haben somit für die chemische Analytik praktisch keine Bedeutung.

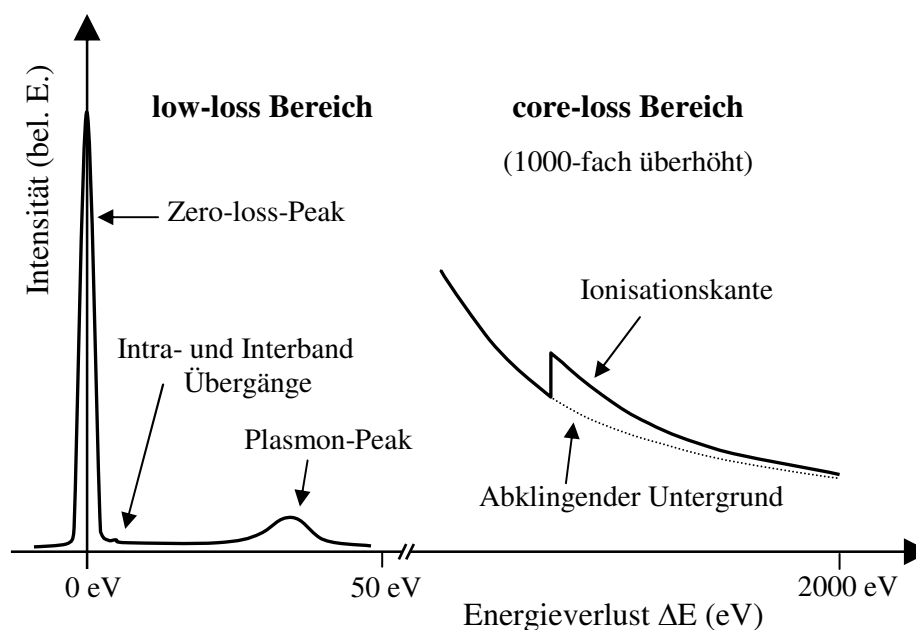


Abb. 2.12 Schematische Darstellung eines Elektronenenergieverlust-Spektrums

Der zweite Bereich der Elektronenenergieverluste bis ≈ 50 eV wird low-loss Bereich genannt (je nach Definition wird der zero-loss Bereich auch häufig zum low-loss Bereich gezählt). Die Energieverluste im low-loss Bereich setzen sich aus Intra- und Interbandübergängen und dem Plasmon-Peak zusammen. Übergänge, die einen Energieverlust bis ≈ 10 eV verursachen, werden durch äußere Schalen der Streuatome verursacht. Die Analyse dieser Elektronenenergieverluste bietet die Möglichkeit, wichtige Kenngrößen (wie beispielsweise die Bandlücke W_g eines Halbleiters) zu bestimmen. Prinzipiell findet sich die gesamte elektronische Bandstruktur der Probe im low-loss Bereich wieder. Somit gibt der low-loss Bereich Rückschluss über die optischen Eigenschaften (Dielektrizitätskonstante, Brechungsindex, ...) [Do98]. Plasmon-Peak wird die kollektive Anregung schwach gebundener Elektronen genannt, die im Festkörper immer auftritt und die sich als relativ breiter Peak im EEL-Spektrum zeigt. Der Energieverlust des Plasmon-Peaks variiert für verschiedene Elemente zwischen 4 eV und 40 eV, wobei die Lage des Peaks für chemisch ähnliche Elemente allerdings oft fast identisch ist [Ho04]. Damit kommt dem Plasmon-Peak eher eine untergeordnete Rolle in der chemischen Analytik zu. Des Weiteren besteht ein enger Zusammenhang zwischen der Lage des Plasmon-Peaks und dem mechanischen Kompressionsmodul. Somit können mittels EELS beispielsweise auch mechanische Eigenschaften von Nanopartikeln bestimmt werden [Ol07]. Zusätzlich zu diesen materialspezifischen Analysemöglichkeiten bietet EELS im low-loss Bereich die Möglichkeit, die absolute Dicke der durchstrahlten Probe zu ermitteln: Mit zunehmender Dicke der Probe treten vermehrt inelastische Wechselwirkungen zwischen Elektronenstrahl und Probe auf, die (im Gegensatz zum Kompressionsmodul) nicht die Lage, sondern die Intensität des Plasmon-Peaks modulieren. Nach Malis et al. kann Gl. (2.9)

$$t = \lambda_m \cdot \ln\left(\frac{I_L}{I_0}\right) \quad (2.9)$$

zur Berechnung der quantitativen Probendicke t herangezogen werden [Ma88]. I_0 steht hierbei für die integrierte Intensität des Zero-loss-Peaks und I_L für die integrierte Intensität des Spektrums bis ca. 50 eV, was hinreichend genau die integrierte Intensität des gesamten Spektrums I_T (aufgrund des starken Intensitätsabfalls) angibt (siehe Abb. 2.13).

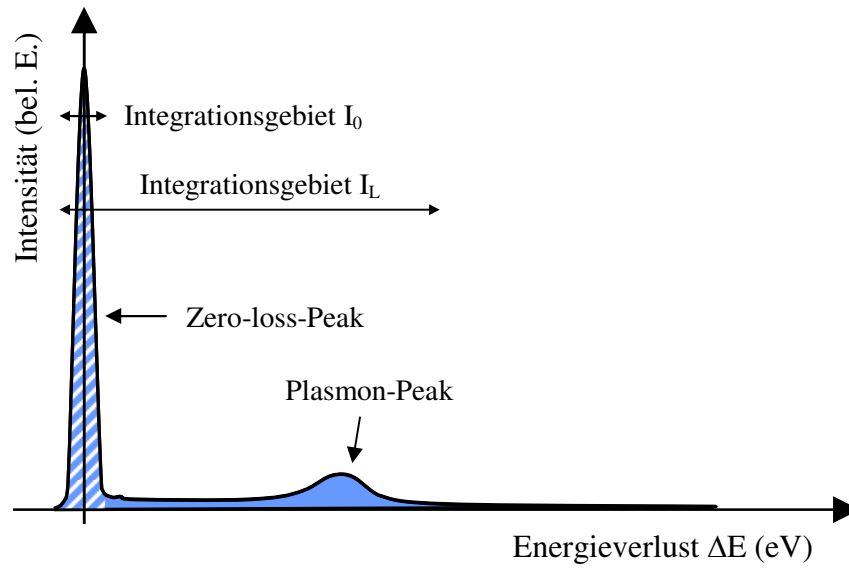


Abb. 2.13 Integrationsbereiche zur Bestimmung der Probendicke im low-loss Spektrum

λ_m steht in Gl. (2.9) für die mittlere freie Weglänge der Elektronen in der Probe und kann abhängig von der Primärenergie des Elektronenstrahls (in keV) und dem Kollektoröffnungswinkel β (in mrad) gemäß folgender zugeschnittener Größengleichung berechnet werden (nach [Ma88]):

$$\lambda_m / \text{nm} = \frac{106 \cdot F \cdot E_0}{E_m \cdot \ln\left(\frac{2 \cdot \beta \cdot E_0}{E_m}\right)} \quad (2.10)$$

E_m (in eV) steht hierbei für den ordnungszahlabhängigen mittleren Energieverlust:

$$E_m = 7.6 \text{ eV} \cdot Z^{0.36} \quad (2.11)$$

Abhängig von der Primärenergie E_0 muss zudem der relativistische Korrekturfaktor F berechnet werden:

$$F = \frac{1 + \frac{E_0}{1022 \text{ keV}}}{1 + \left(\frac{E_0}{511 \text{ keV}}\right)^2} \quad (2.12)$$

Es ergeben sich hiermit typische mittlere freie Weglängen der Elektronen von 98 nm in GaAs ($\bar{Z} = 32$) und von 91 nm in InAs ($\bar{Z} = 41$).

Der core-loss Bereich bildet den dritten und größten Bereich der Elektronenenergieverluste ab ca. 50 eV. Für die quantitative chemische Nano-Analyse wird fast ausschließlich dieser Bereich betrachtet. Die Energieverluste in diesem Bereich werden hauptsächlich durch innere kernnahe Elektronen hervorgerufen, die auf die nächst höheren freien Energieniveaus der Atome (bzw. auch auf Vakuumniveau) angehoben werden. Nach Ahn et al. sollten, abhängig von der Ordnungszahl Z , für die quantitative Bestimmung von Elementkonzentrationen mittels EELS die folgenden Ionisationskanten genutzt werden [Ah83]:

- $Z=1$ bis $Z=14$: K-Kante (Anheben von 1s-Elektronen)
- $Z=13$ bis $Z=36$: $L_{2,3}$ -Kante (Anheben von 2p-Elektronen)
- $Z=37$ bis $Z=83$: $M_{4,5}$ -Kante (Anheben von 3d-Elektronen)
- $Z \geq 84$: Es kommen vor allem die $N_{6,7}$ -Kanten (Anheben von 4f-Elektronen) und die $O_{4,5}$ -Kanten (Anheben von 5d-Elektronen) in Frage. Eine eindeutige systematische Aussage ist hier allerdings nicht möglich

Diese Kanten befinden sich einerseits in einem messtechnisch relativ gut zugänglichen Energiebereich und besitzen andererseits jeweils eine relative große Signalintensität.

Exemplarisch sind in Abb. 2.14 EELS- $L_{2,3}$ -Kanten der Verbindungshalbleiter Gallium ($Z=31$; Einsatz der $L_{2,3}$ -Kante bei 1115 eV) und Arsen ($Z=33$; Einsatz der $L_{2,3}$ -Kante bei 1323 eV) dargestellt. Die Lage der hierbei entstehenden charakteristischen Ionisationskanten im Energieverlustspektrum kann den verschiedenen Elementen eindeutig zugeordnet werden, wodurch ein Elementnachweis mit einer Ortsauflösung von 1-2 nm möglich ist [Br01]. Weiterhin ist eine genaue quantitative Bestimmung des absoluten Elementanteils in der Probenstelle durch die Messung der Intensität der charakteristischen Kanten möglich, was im Folgenden erläutert wird.

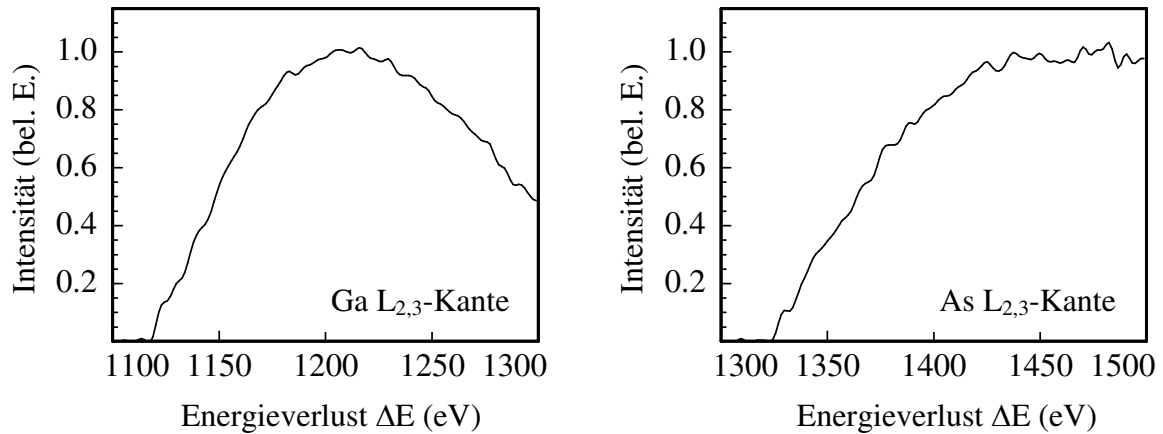


Abb. 2.14 EELS- $L_{2,3}$ -Kanten von Gallium und Arsen

2.2.3.3 Quantitative chemische Analyse mit EELS

Zur quantitativen Messung der chemischen Komposition nutzt man aus, dass die Intensität der jeweiligen charakteristischen Kante einer core-loss-EELS-Messung direkt vom atomaren Anteil des entsprechenden chemischen Elements abhängt. Zur analytischen Auswertung muss der stets vorhandene abklingende Untergrund des Spektrums (siehe Abb. 2.15) von der charakteristischen Kante abgezogen werden. Hierzu wird der abklingende Untergrund durch eine Fitfunktion angenähert und bis in den Bereich der Ionisationskante extrapoliert. Üblicherweise wird für die energieabhängige Intensität I des Untergrunds die Fitfunktion (Gl. (2.13))

$$I = A \cdot \Delta E^{-r} \quad (2.13)$$

verwendet, die einem inversen Energiengesetz entspricht [Eg96]. Die Fitparameter A und r werden nach bestmöglicher Übereinstimmung zwischen Fitfunktion und Untergrund im Anpassbereich optimiert und festgelegt. Prinzipiell kann aber auch jede andere Funktion (z.B. auch eine Gerade oder eine Gaußfunktion) gewählt werden, die den abklingenden Verlauf des Untergrunds im Anpassungsbereich beschreibt [Wi96].

Wie in Abb. 2.15 schematisch dargestellt, wird die integrierte Intensität I_{Kante} der (vom Untergrund befreiten) Ionisationskante im Integrationsbereich Δ bestimmt, der an den Anpassungsbereich Γ angrenzt. In diesem Bereich ist der Fehler durch mögliche Abweichungen der Fitfunktionen vom realen Untergrund am geringsten und das Signal der Ionisationskante am stärksten.

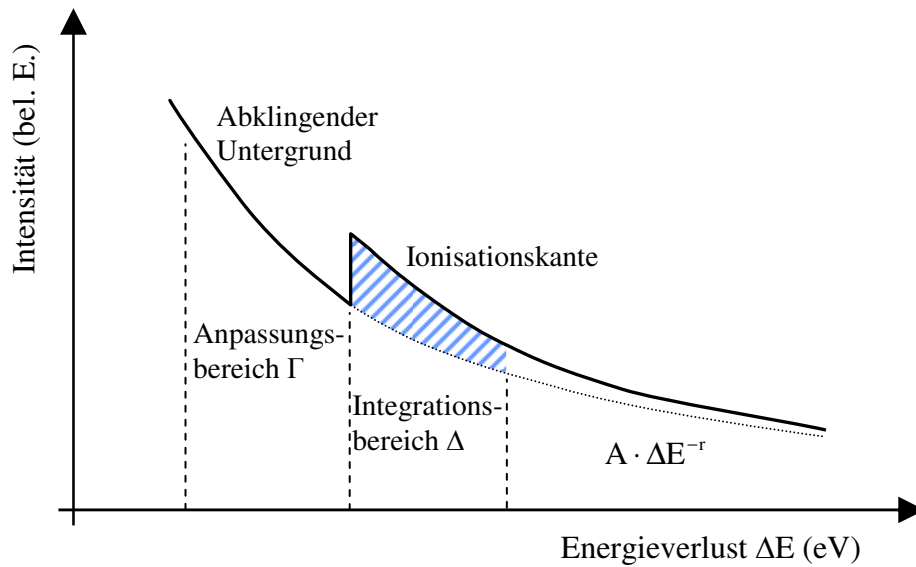


Abb. 2.15 Anpassungs- und Integrationsbereich zur Bestimmung des chemischen Gehalts

Der gesuchte Zusammenhang zwischen der Anzahl der Atome/cm³ N_A und der integrierten Intensität $I_{\text{Kante},A}$ wird in erster Näherung durch Gl. (2.14) beschrieben:

$$I_{\text{Kante},A} = N_A \cdot \sigma_{\text{Kante},A} \cdot I_T \quad (2.14)$$

Hier ist $\sigma_{\text{Kante},A}$ der Wirkungsquerschnitt der zur jeweiligen Kante gehörenden Schale (K, L, M, ...) und I_T ist, wie bereits in Abb. 2.13 skizziert, die gesamte integrierte Intensität des durch die Probe transmittierten Elektronenstrahls. Für die möglichst präzise Auswertung der chemischen Komposition an der Messstelle ist zu beachten, dass I_T exponentiell probendickenabhängig ist. Für eine möglichst exakte Bestimmung des chemischen Gehalts ist es daher zweckmäßig, den Einfluss dieses Parameters zu eliminieren, was durch die Messungen einer Referenzkante unter identischen Messbedingungen möglich ist. Beispielsweise kann bei der Bestimmung des chemischen Gehalts epitaktisch gewachsener Schichten in Halbleiter-Heterostrukturen oft sehr einfach das Substrat oder die darauf aufgewachsene Bufferschicht als geeignete Referenz ausgenutzt werden. Ist die chemische Komposition der Referenz N_{Ref} bekannt, so kann N_A präzise nach Gl.(2.15) errechnet werden:

$$N_A = N_{\text{Ref}} \cdot \frac{I_{\text{Kante},A}}{I_{\text{Kante},\text{Ref}}} \quad (2.15)$$

Ist keine Referenz vorhanden, kann alternativ die relative Elementkonzentration zweier Elemente A und B ebenfalls unabhängig von I_T nach Gl. (2.16) ermittelt werden:

$$\frac{N_A}{N_B} = \frac{I_{\text{Kante},A} \cdot \sigma_{\text{Kante},B}}{I_{\text{Kante},B} \cdot \sigma_{\text{Kante},A}} \quad (2.16)$$

Die unbekannten Wirkungsquerschnitte können dazu beispielsweise aus Hartree-Slater-Modellen [Re89] je nach Element und Kantentyp (K, L, M, ...) simuliert werden.

2.2.3.4 Feinstruktur der Ionisationskanten im Elektronenenergieverlustspektrum

Betrachtet man die core-loss Ionisationskanten mit einem energetisch hochauflösenden (Energieauflösung ≤ 0.05 eV) EELS-System, können weitere chemische Informationen bzgl. des analysierten Probengebiets gewonnen werden: Insbesondere die Oxidationszahl des ionisierten Atoms und damit auch die chemische Bindung selbst verursachen in der kantennahen Feinstruktur einer core-loss-Ionisationskante im EEL-Spektrum charakteristische Variationen. Charakteristika, wie eine energetische Verschiebung der Ionisationskante (auch als „chemical shift“ bezeichnet), oder z.B. eine Intensitätsänderung einzelner kantennaher Peaks („white-lines“) sind Gegenstand sogenannter ELNES- (energy-loss near-edge structure) Untersuchungen. Zur Veranschaulichung zeigt Abb. 2.16 schematisch den Verlauf zweier Ionisationskanten eines fiktiven Elements X, das einmal

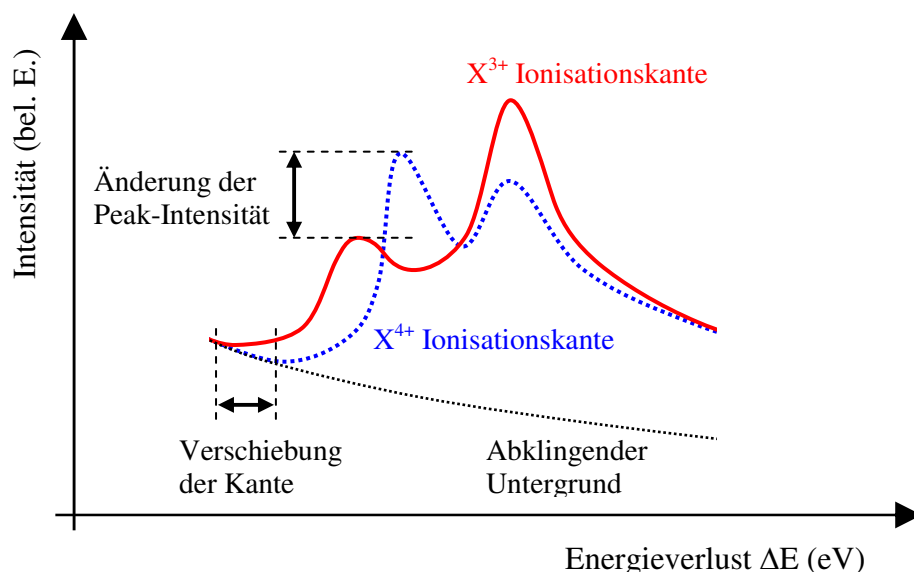


Abb. 2.16 Schematische Darstellung typischer ELNES-Charakteristika

mit der Ordnungszahl 3+ und einmal mit der Ordnungszahl 4+ in eine Kristallmatrix eingebaut wurde. Zu erkennen ist in diesem Beispiel, dass sich der Beginn der Ionisationskante verschoben und dass sich die Intensität der beiden Peaks charakteristisch verändert hat. Durch den Vergleich realer Messungen mit Standard ELNES-Spektren (die für die meisten Elemente in verschiedenen chemischen Verbindungen vorliegen) kann somit auf die aktuell vorliegende Oxidationszahl geschlossen werden. Beispielsweise stellt sich bei der Herstellung von metallisch dotierten Nanopartikeln die Frage nach dem chemischen Einbau der jeweiligen Elemente. In Abb. 2.17 ist hierzu exemplarisch die ELNES-Messung eines Cr-dotierten ZnO-Nanopartikels gezeigt. Das ZnO-Nanopartikel

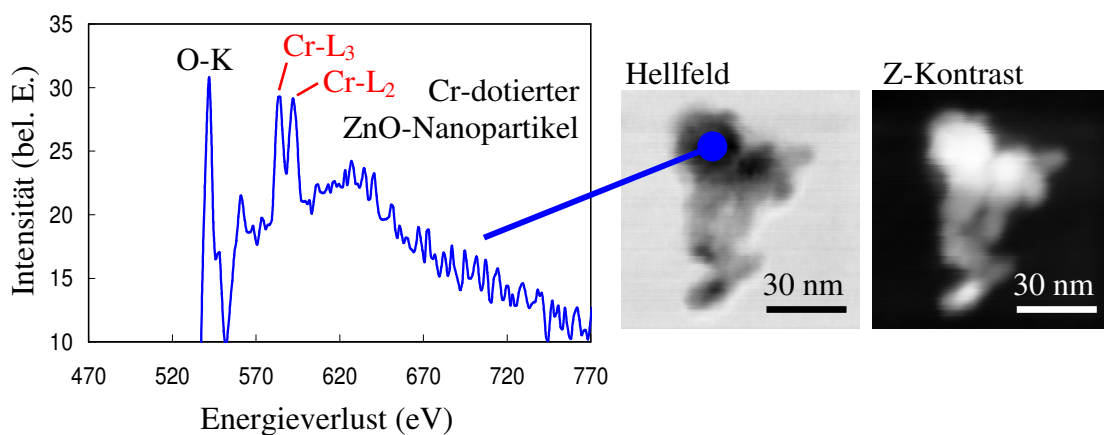


Abb. 2.17 ELNES-Messung (links) eines ZnO-Nanopartikels. Rechts: Hellfeld- und Z-Kontrastaufnahme des ZnO-Nanopartikels mit angedeutetem Ort der Messung

ist mittels Hellfeld- und Z-Kontrastaufnahme nebenstehend abgebildet. Die Untersuchung der Feinstruktur der Cr-L_{2,3}-Kante (siehe Abb. 2.17) zeigt in diesem Fall ausgeprägte L₂- und L₃-Peaks. Vergleicht man die gemessene ELNES-Feinstruktur mit entsprechenden Referenzspektren (siehe Abb. 2.18), so ist zu erkennen, dass die gemessene Kurve (Abb. 2.17) dem ELNES-Signal einer reinen Cr-Dünnschicht (Abb. 2.18, links) am ähnlichsten ist. Cr-Spektren typischer Cr-Oxidationszahlen (Cr²⁺, Cr³⁺ und Cr⁶⁺) zeigen hingegen im Vergleich einen deutlich schwächer ausgeprägten L₂-Peak (Abb. 2.18, rechts). Die Ähnlichkeit des gemessenen Spektrums mit dem Cr-Dünnschicht-Spektrum deutet somit darauf hin, dass das gemessene Cr in diesem Fall chemisch nicht in die ZnO-Matrix des Nanopartikels eingebaut ist.

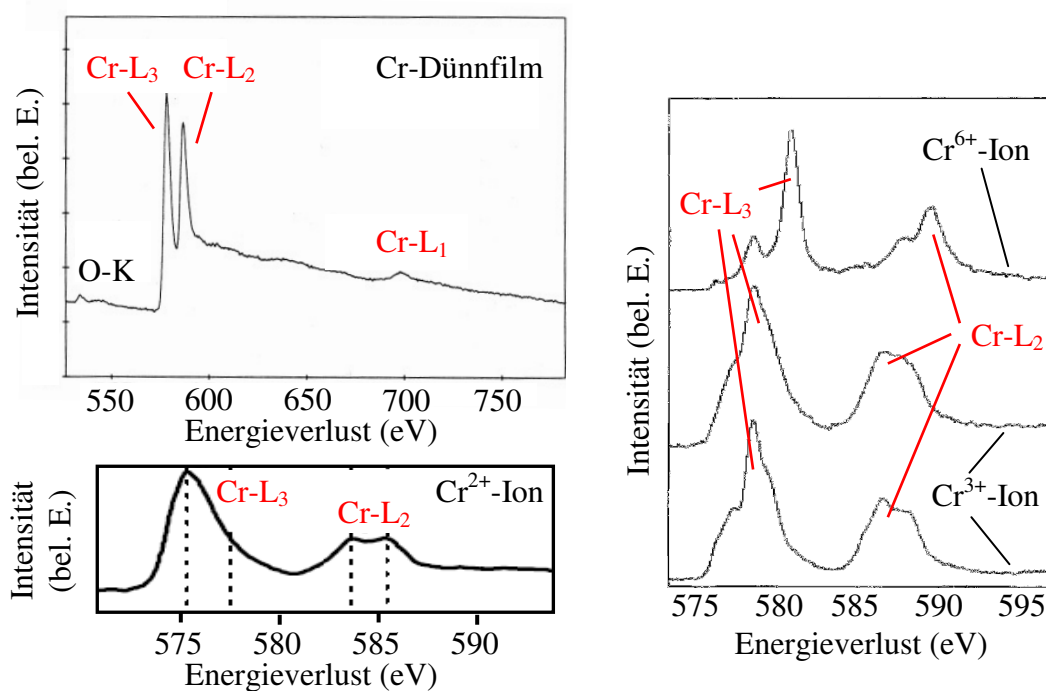


Abb. 2.18 ELNES-Referenzspektren einer Cr-Dünnsfilmschicht (links oben; nach [Ah83]), von in CrSiO_4 chemisch eingebauten Cr^{2+} -Ionen (links unten; nach [St07]) und von in Mineralen eingebauten Cr^{3+} - und Cr^{6+} -Ionen (rechts; nach [Ga94])

2.2.4 Elektronenbeugungsverfahren

Beugungseffekte der Elektronen werden im RTEM üblicherweise in zwei verschiedenen Messmethoden ausgenutzt: Zum einen gibt es die Möglichkeit, Beugungsbilder aus der Feinbereichsbeugung (auch selected area diffraction, SAD) zu erhalten. Hierzu wird mittels eines möglichst parallelen Elektronenstrahls ein ausgewählter Probenbereich bestrahlt, dessen Durchmesser durch die Größe der SAD-Blende bestimmt wird. Nachteil dieser Methode ist, dass durch die parallele Bestrahlung die Ortsauflösung lediglich etwa 100 nm [Wi96] beträgt. Zudem wirken sich kleinste Inhomogenitäten der Probenoberfläche (z.B. Welligkeiten) aus und beeinflussen die Beugungsbilder stark.

Eine andere Möglichkeit, Beugung im RTEM auszunutzen, bietet die Elektronenbeugung im konvergenten Strahl (convergent beam electron diffraction, CBED), bei der die Elektronensonde, wie z.B. auch bei der Hellfeldabbildung, fokussiert auf die Probe gerichtet bleibt (siehe auch [Wi96]). Durch die Fokussierung erreicht diese Methode prinzipiell eine deutlich bessere Ortsauflösung (1 nm, [La93]) im Vergleich zur SAD-Methode, zudem wirken sich Probeninhomogenitäten durch die bessere Ortsauflösung

deutlich weniger auf die Beugungsbilder aus. Das durch CBED erzeugte Beugungsbild (siehe Abb. 2.19, links) besteht aus den sogenannten Bragg-Scheiben, die äquivalent zu den Bragg-Reflexen sind, die bei der parallelen Anregung mittels SAD entstehen. In der Mitte des CBED-Beugungsmusters bilden sich Bragg-Scheiben aus, die zur Laue-Zone nullter Ordnung (auch ZOLZ, zero-order Laue zone) gehören. Weiter außen im Beugungsbild entstehen Beugungserscheinungen, die zu Laue-Zonen höherer Ordnung (HOLZ, high-order Laue zone) gehören (in Abb. 2.19 nicht dargestellt). Diese HOLZ Bragg-Scheiben entarten ringförmig rund um die Laue-Zone nullter Ordnung. Innerhalb der Laue-Zone nullter Ordnung entstehen zudem durch die streifenförmigen HOLZ-Intensitätsmaxima die sogenannten HOLZ-Linien. Neben den HOLZ-Linien kann man im CBED-Beugungsbild die nach ihrem Entdecker benannten Kikuchi-Linien beobachten, die durch die Beugung von zuvor diffus gestreuten Elektronen entstehen.

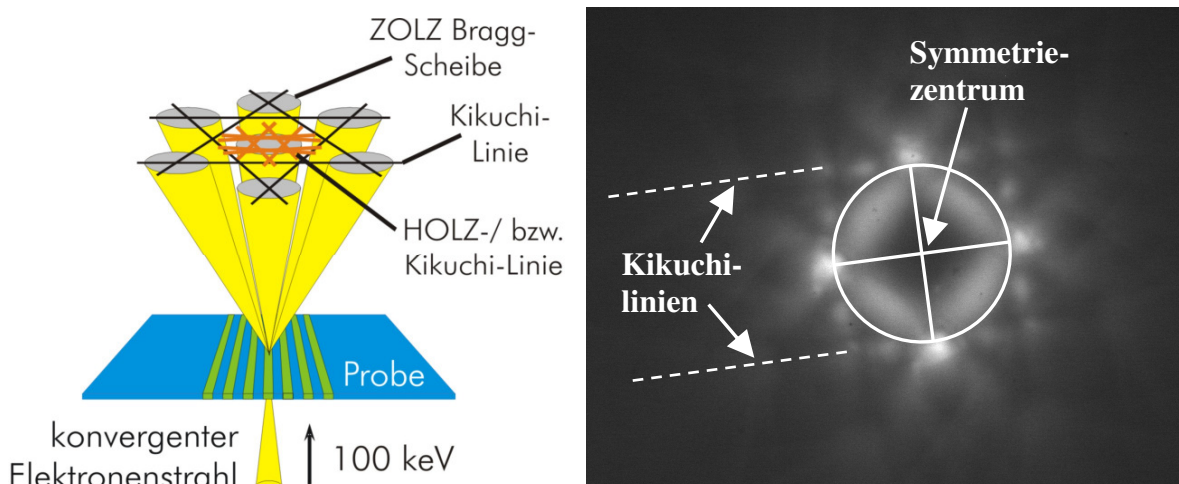


Abb. 2.19 Prinzipbild zur CBED-Methode (links) und Ausschnitt eines gemessenen CBED-Beugungsbildes an $[001]$ -orientiertem InP mit eingezeichnetem Symmetriezentrum (rechts)

Sowohl HOLZ- als auch Kikuchi-Linien sind direkt an die Ausrichtung des Kristalls gebunden und geben verschiedene kristallographische Informationen (z.B.: Gitterverspannung oder Kristalltyp) wider. Wird die Probe gegenüber dem Elektronenstrahl verkippt, so verschiebt man die Lage der Linien im Beugungsbild. Diese Abhängigkeit wird ausgenutzt, um eine Probe exakt entlang einer bestimmten Kristallrichtung auszurichten. Hierdurch kann beispielsweise bei exakt paralleler Ausrichtung von Kristallachse und Elektronenstrahl die Verbreiterung des Elektronenstrahls während der Transmission durch die Probe minimiert werden. Sogenannte

Channeling-Effekte sorgen bei dieser Parallelität dafür, dass die Elektronen während der Transmission nur minimal im Kristallgitter gestreut werden, da sie im Kristall entlang einer Achse nun wie in einem Kanal geführt werden. Exemplarisch wird in Abb. 2.19 (rechts) ein CBED-Beugungsbild einer in [001]-Richtung orientierten InP-Probe gezeigt. Das Symmetriezentrum der gebeugten Elektronen gibt die exakte [001]-Richtung an und wird paarweise durch Kikuchi-Linien eingegrenzt. Basierend auf der Lage der verschiedenen Linien im CBED-Beugungsbild können prinzipiell weitere kristallographische Informationen, wie z.B. die lokale Gitterkonstante a , mit sehr hoher Genauigkeit ($\Delta a/a \leq 10^{-3}$, [Tw88]) bestimmt werden. Hierzu werden Beugungsbilder aufgenommen und mit Beugungssimulationen des entsprechenden Kristalls verglichen.

2.3 Aufbau und Funktionsprinzip des RTEM

Bei dem für die Analytik der Quantenstrukturen in dieser Arbeit genutzten RTEM handelt es sich um ein ehemals kommerziell erhältliches Mikroskop des Typs HB 501 der Firma „Vacuum Generators Scientific“. In den relevanten Bereichen im Mikroskop herrschen Ultra-Hoch-Vakuum (UHV) Bedingungen, wobei der Bereich der Elektronenquelle wesentlich höhere Anforderungen an das Vakuum stellt als der Rest des Mikroskops, da zur Elektronengeneration eine kalte Feldemissionsquelle (einkristalline Wolframkathode) verwendet wird. Bei dieser Kathodenart wird zwischen Emissionsanode und der eigentlichen Spitze eine Extraktionsspannung im Bereich von 3-4 kV angelegt. Hierdurch werden an der Spitze der Wolframkathode Feldstärken in der Größenordnung von 10^9 V/m erzeugt, die bei den vorhandenen Geometrien ausreichen, um einen Tunnelstrom zwischen Spitze und Anode im μ A-Bereich zu erzeugen. Für den dauerhaften Betrieb einer kalten Feldemissionskathode ist es notwendig, ein Vakuum von weniger als $5 \cdot 10^{-11}$ mbar zu gewährleisten, damit es lediglich zu Ausbildung des Tunnelstroms und nicht zu Überschlügen kommt, die die Elektronenquelle beschädigen würden. Diesen sehr geringen Druck im Bereich der Elektronenquelle erreicht eine Ionen-Getter-Pumpe in Kombination mit einer Titan-Sublimationspumpe. Diese vakuumtechnisch aufwändige Art der Elektronenerzeugung bietet zwei wesentliche Vorteile gegenüber herkömmlichen thermischen Elektronenquellen: Zum einen ist der Richtstrahlwert einer Feldemissionsquelle um etwa einen Faktor 1000 besser als bei einer thermischen Emissionsquelle. Dies führt zu höheren Strahlströmen und somit zu einem wesentlich besseren Signal-Rausch-Verhältnis. Zum anderen weist die kalte Feldemissionsquelle eine

sehr schmale Energieverteilung von $\Delta E \leq 0.3 \text{ eV}$ [Re97] der generierten Elektronen auf. Sowohl die schmale Energieverteilung als auch das gute Signal-Rausch-Verhältnis sind u.a. im Hinblick auf EELS-Messungen im RTEM von großem Vorteil. Eine schmale Energieverteilung der generierten Elektronen lässt prinzipiell bessere Energieauflösungen zu, und ein gutes Signal-Rausch-Verhältnis ermöglicht eine exaktere Auswertung der quantitativen Elementkonzentration.

Im übrigen Bereich des Mikroskops wird mittels einer Öl-Diffusionspumpe und einer Titan-Sublimationspumpe ein Druck im Bereich von 10^{-9} mbar aufrechterhalten, um eine Streuung und damit eine Aufweitung des Elektronenstrahls zu verhindern. Der Bereich der Feldemissionsquelle ist mit dem restlichen Bereich des Mikroskops durch eine differentielle Druckstufe verbunden, so dass die mit bis zu 100kV beschleunigten Elektronen den Bereich der Elektronenquelle verlassen können (siehe Abb. 2.20). Zur Durchführung der Elektronen durch die Druckstufe wird der Elektronenstrahl mittels einer Hilfslinse (der sogenannten gun lens) fokussiert. Im weiteren Verlauf des RTEMs wird der kleinste Querschnitt des Elektronenstrahls (der sogenannte cross over) durch zwei weitere Linsensysteme (Kondensor und Objektiv) weiter verkleinert. Die sphärische Aberrationskonstante des verwendeten Polschuhs der Objektivlinse beträgt $C_s = 1.3 \text{ mm}$ [Bo95]. Der kleinste erreichbare Sondendurchmesser auf der Probe beträgt etwa 0.2 nm [La93] und bestimmt somit die Ortsauflösung des Mikroskops. Der Konvergenzwinkel des Elektronenstrahls wird letztendlich durch den Durchmesser der Objektivblende ($50 \mu\text{m}$) definiert. Zwischen Kondensor- und Objektivlinse befinden sich zwei senkrecht zueinander angebrachte Rasterspulen, die den Elektronenstrahl im Rasterbetrieb zeilenweise positionieren. Für die Erstellung der zweidimensionalen Mikroskopbilder (Hellfeld, Z-Kontrast) werden dazu synchron die intensitätsmodulierten Signale der entsprechenden Detektoren auf TV-Schirmen abgebildet (oder bei der rechnergestützten Ansteuerung als tif-Grafikdatei gespeichert). Im VG HB 501 befindet sich zur Aufnahme von Z-Kontrast-Mikroskopbildern ein HAADF Everhart-Thornley-Detektor, der ringförmig um die elektronenoptische Achse angebracht ist. Der zur Aufnahme der Hellfeld- (bzw. Dunkelfeld-)Aufnahmen notwendige Everhart-Thornley-Detektor ist nicht direkt über der Probe angebracht, sondern befindet sich hinter dem für das EELS-System benötigten magnetischen Sektorfeld und einer nachträglich für die gleichzeitige Benutzung von Hellfeld und EELS konstruierten elektrooptischen Weiche (ψ -Tube genannt). In der ψ -Tube sind zusätzlich zu den notwendigen Ablenkspulen (für die Weichenfunktion) Quadrupollinsen vorhanden, die eine Manipulation des Elektronenstrahls erlauben: Die

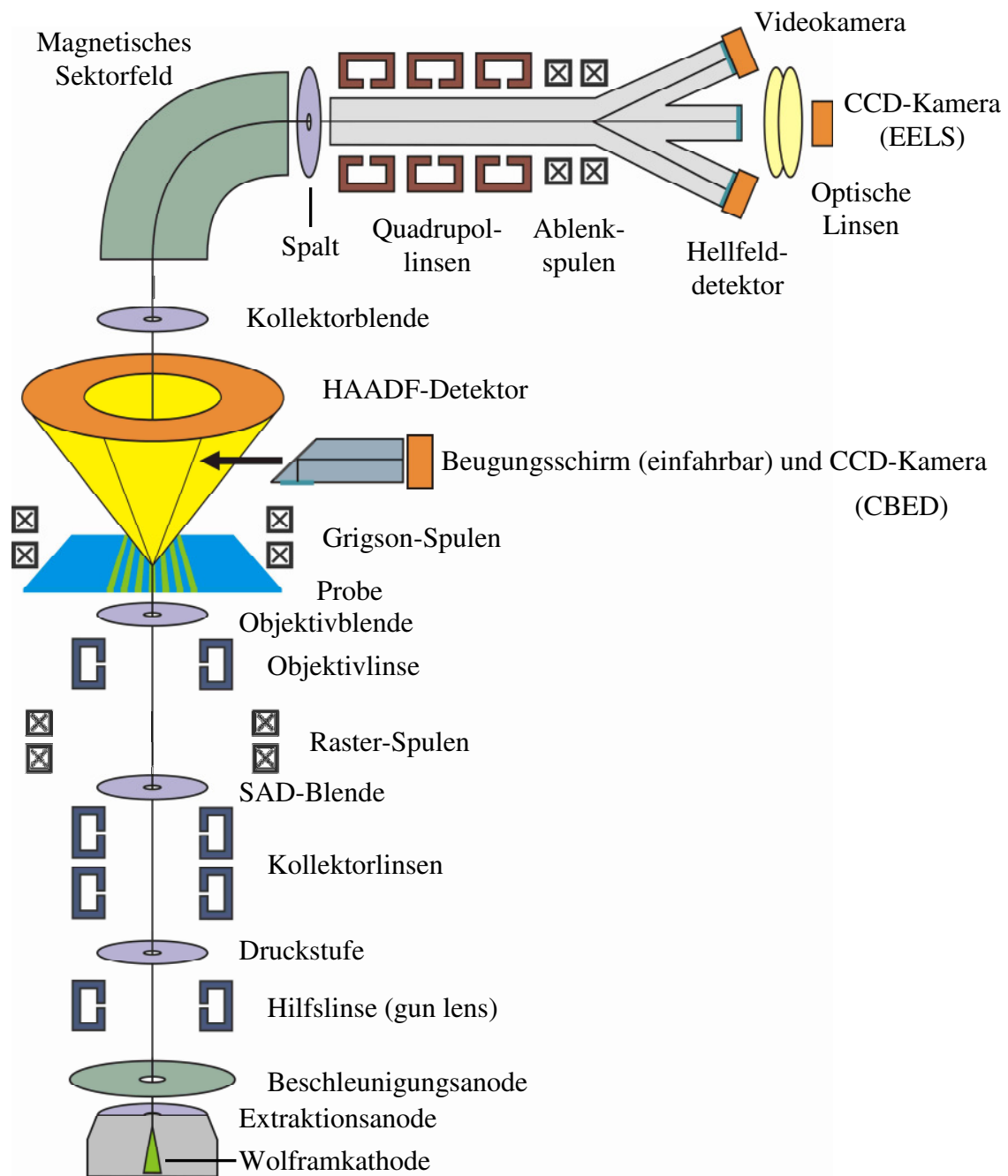


Abb. 2.20 Aufbau des Raster-Transmissionselektronenmikroskops

Quadrupollinsen ermöglichen die geeignete Abbildung des gewünschten Teils des Energieverlustspektrums durch die Optik auf die CCD-Kamera. Das verwendete EELS-System leistet, basierend auf dem kalten Feldemissions-RTEM und mit einem EELS-Zusatz der Firma Cambrigde Fine Instruments, eine Energieauflösung von 0.35 eV [Br01]. Dieser sehr geringe Wert ermöglicht eine sehr feine Energieauflösung [Wi96], verglichen

mit üblichen Raster-Transmissionselektronenmikroskopen, die meist auf thermisch unterstützten Feldemissionskathoden basieren. Speziell bei der Aufnahme von ELNES-Spektren (bzw. allgemein bei der Aufnahme energetisch hochaufgelöster EELS-Spektren) ist zu beachten, dass die Energieauflösung der Kathode und die verwendete EELS-Apparatur prinzipiell das Messergebnis beeinflussen. Die gemessenen Spektren entstehen durch die Faltung der tatsächlichen Spektren mit den energetischen Eigenschaften des verwendeten Messsystems. Um diese Effekte zu berücksichtigen, wird das tatsächliche ELNES-Spektrum errechnet durch Rückfaltung des gemessenen ELNES-Spektrums mit der Impulsantwort des EELS-Systems (Zero-loss-Peak).

Zur Erzeugung von CBED-Beugungsbildern kann ein Beugungsschirm, bestehend aus einer Phosphor-Schicht (zur Photonen-Erzeugung) und einem Spiegel, eingefahren werden. Die in ein optisches Signal umgewandelten Beugungsbilder werden anschließend durch eine Optik auf eine CCD-Kamera abgebildet. Die zu untersuchende Probe kann im verwendeten Mikroskop lateral in beide Richtungen mittels Schrittmotoren verfahren und verkippt werden, wodurch eine präzise Ausrichtung und Orientierung der gewünschten Messstelle möglich ist. Für den Fall, dass einzelne Beugungsreflexe (beispielsweise in der Dunkelfeldabbildung) analysiert werden sollen, stehen sog. Grigson-Spulen zur Verfügung, die den jeweiligen Beugungsreflex des transmittierten Elektronenstrahls so ablenken können, dass zur Detektion wiederum der Hellfelddetektor verwendet werden kann [Wi96]. Die wesentlichen Kenndaten der verschiedenen Messmethoden sind abschließend in folgender Übersicht zusammengefasst:

RTEM-Messmethode	Analysemöglichkeiten	Auflösung
Hellfeldabbildung (Dunkelfeldabbildung)	Schicht-/Strukturgröße, Verspannung, Defektarten und -dichten	0.3 nm
Z-Kontrastabbildung	Schicht-/Strukturgrößen, chemisches Mapping (qualitativ)	0.3 nm
CBED	Kristallstruktur und -ausrichtung	1 nm
SAD	Kristallausrichtung	100 nm
EELS	Chemische Komposition (quantitativ), chemische Bindung	1-2 nm; 0.35 eV

3 Selbstorganisierte Halbleiter-Quantenstrukturen

In diesem Kapitel werden die essentiellen Grundlagen zum Verständnis der experimentellen Ergebnisse (Kapitel 4 bis 7) an selbstorganisierten Halbleiter-Quantenstrukturen vorgestellt. Hierfür werden zunächst in Abschnitt 3.1 wichtige Halbleiter-Quantenstrukturen definiert und es wird auf deren Morphologie eingegangen. In Abschnitt 3.2 wird anschließend detailliert auf die Herstellung von Halbleiter-Quantenstrukturen mittels Selbstorganisation eingegangen. Die Entstehung der unterschiedlichen Morphologien wird hierauf aufbauend in Abschnitt 3.3 vorgestellt. Abschnitt 3.4 erläutert abschließend explizit die Vorgehensweise der Probenpräparation durch einen mehrstufigen Prozess, der die selbstorganisierten Halbleiter-Quantenstrukturen letztlich für die Raster-Transmissionselektronenmikroskopie zugänglich macht.

3.1 Ausgewählte Morphologien selbstorganisierter Halbleiter-Quantenstrukturen

Unter einer Quantenstruktur versteht man ein Materie-Konglomerat (z.B. einkristalliner Festkörper), das in mindestens einer Raumrichtung eine räumlichen Ausdehnung in der Größenordnung der de Broglie-Wellenlänge von Elektronen besitzt (siehe z.B. [Bi99]). Bettet man in einen Halbleiter eine Quantenstruktur aus einem anderen Halbleitermaterial mit unterschiedlicher Bandstruktur (z.B. geringere Bandlücke) ein, ist die Bewegungsfreiheit der Ladungsträger in dieser Raumrichtung der Quantenstruktur stark eingeschränkt und quantenmechanische Effekte bestimmen nun das physikalische Verhalten der Ladungsträger. Unterschieden werden Quantenstrukturen häufig nach der Anzahl der räumlichen Dimensionen, in denen die Quantisierung der Ladungsträger erfolgt. Reduziert man, ausgehend von einem Volumenmaterial, jeweils einen Freiheitsgrad der Ladungsträger, so erhält man flächenartige (zweidimensionale), linienartige (eindimensionale) und punktförmige (nulldimensionale) Quantenstrukturen. Herstellbare bekannte Vertreter der idealen Strukturen sind der quasi zweidimensionale

Quantum Well (QW), der quasi eindimensionale Quantum Wire (QWire) und der quasi nulldimensionale Quantum Dot (QD). Besitzt ein QWire eine relativ geringe Ausdehnung in Längsrichtung (Größenordnung $\leq 1 \mu\text{m}$), so wird die entstehende Struktur oft auch als Quantum Dash (QDash) bezeichnet. Der Begriff QDash wird im Englischen allerdings (leider) nicht einheitlich verwendet. Man findet in der Literatur daher eine Vielzahl an Begriffen vor, die alle die gleichen Strukturen bezeichnen, wie z.B.: Quantum Dash [Ut96, Sa05a], Quantum Stick [Ge04, Mi04], Quantum Islands [Po95], Quantum Wire [Wa00b] oder auch ganz allgemein Nanostructure [Gu02]. Eine weitere relativ bekannte Morphologie einer Halbleiter-Quantenstruktur ist zudem der Quantum Ring. Abb. 3.1 zeigt in schematischer Darstellung eine Auswahl typischer Quantenstrukturen (ohne Anspruch auf Vollständigkeit). Viele weitere Morphologien existieren oder sind denkbar. Die jeweilige Querschnittsform kann wiederum variieren und muss - z.B. im Falle eines QDs - nicht zwangsläufig dreieckig sein. Obwohl sich die Morphologie der verschiedenen Strukturen

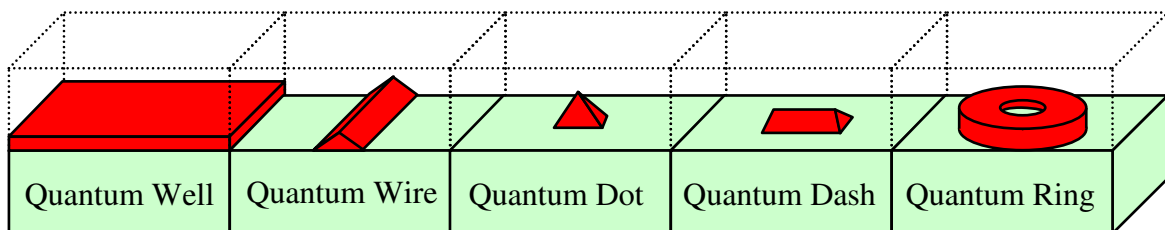


Abb. 3.1 Schematische Darstellung unterschiedlicher Quantenstrukturen. Die gestrichelten Linien deuten eine Deckschicht an

teilweise relativ stark unterscheidet, profitieren sämtliche Strukturen vom gleichen physikalischen Effekt: der (Größen-) Quantisierung in mindestens einer Raumrichtung. Dieser quantenmechanische Effekt beeinflusst das optische und elektrische Verhalten der Quantenstrukturen maßgeblich. In konkreten Anwendungen zeigen verschiedene Morphologien unterschiedliche Vorzüge. Arakawa et al. erkannten z.B. bereits 1982, dass die Quantisierung in allen drei Raumrichtungen im QD viele Vorteile mit sich bringt. So führt die Quantisierung in QD-Laser-Dioden z.B. zu einer besseren Temperaturstabilität der Schwellstromdichte [Ar82]. Sollen mit Quantenstrukturen hingegen möglichst große Emissionswellenlängen (z.B. im Bereich $1.55 \mu\text{m}$ bis $2 \mu\text{m}$) erreicht werden, ist eine

QDash-Struktur (auch aufgrund der in Frage kommenden Materialsysteme) prinzipiell zweckmäßig [Re05].

Die Herstellung von Halbleiter-Quantenstrukturen kann durch unterschiedlichste Ansätze erfolgen (für eine Übersicht siehe z.B. [Nö96, Bi99]). Eine bereits in den 80er Jahren praktizierte Möglichkeit besteht in der nachträglichen Strukturierung von QW-Schichten [z.B. Ma89]. Abhängig von der Ortsauflösung der verwendeten Strukturierungsmethode lassen sich QW-Schichten gezielt und reproduzierbar strukturieren. Direkte Strukturierungen erlaubt z.B. die Fokussierte Ionenstrahl-Lithographie [St92, Na07]. Diese Methode entfernt durch den Beschuss hochenergetischer Ionen (z.B. Ga) Material direkt aus der Kristallmatrix. Mit einer für diese Methode typischen Ortsauflösung von etwa 30 nm konnten z.B. Wu et al. mittels Fokussierter Ionenstrahl-Lithographie Si-QDs auf Si-Substrat erzeugen [Wu05a]. Bessere Auflösungen erreicht z.B. die Verwendung der Elektronenstrahl-Lithographie [Cr83]. Durch Belichten von Positiv- oder Negativlacken können auch hier unterschiedlichste Morphologien vorgegeben werden. Mit Hilfe von Ätzschritten können dann freistehende Quantenstrukturen erzeugt werden. Bei dieser Methode erreicht man, begrenzt durch die Eigenschaften der Elektronenstrahllacke, Ortsauflösungen im Bereich von 10 nm [Br96]. Ein großer Nachteil bei der Herstellung besonders kleiner (< 100 nm) freistehender Quantenstrukturen ist die Tatsache, dass die freigeätzten Grenzflächen die elektrischen und optischen Eigenschaften entstandener Quantenstrukturen stark beeinflussen. Die integrierte Photolumineszenz-Intensität freigeätzter Quantenstrukturen kann bedingt durch Defekte und Verunreinigungen im Vergleich zu eingebetteten QW deutlich (um Größenordnungen) herabgesetzt werden [Bi99]. Ein weiterer Nachteil ist der relativ hohe technische Aufwand dieser nachträglichen Strukturierung.

Verstärkt in den Fokus der Forschung gerückt ist daher in den letzten Jahren ein anderer Ansatz zur Herstellung: Die selbstorganisierte Bildung von Halbleiter-Quantenstrukturen [St38, Go85]. Der Effekt der Selbstorganisation bietet den großen Vorteil, Halbleiter-Quantenstrukturen ohne eine nachträgliche externe Manipulation herstellen zu können. Des Weiteren können diese selbstorganisierten Quantenstrukturen versetzungsfrei in eine Kristallmatrix eingebettet werden, was sich wiederum vorteilhaft auf die optischen und elektrischen Eigenschaften auswirkt. Die physikalischen Mechanismen und technischen Rahmenbedingungen, die bei der Herstellung

selbstorganisierter Halbleiter-Quantenstrukturen mittels Molekularstrahlepitaxie zu berücksichtigen sind, werden in den folgenden Abschnitten diskutiert.

3.2 Herstellung selbstorganisierter Quantenstrukturen mittels Epitaxie

In diesem Abschnitt wird das selbstorganisierte Wachstum von Halbleiter-Quantenstrukturen mittels Epitaxie erläutert. Die Herstellung der selbstorganisierten Quantenstrukturen benötigt hierbei prinzipiell keine weiteren technologischen Schritte, wie Lithographie oder Vorstrukturieren von Substraten. Zudem können meist gewöhnliche (z.B. [001]-orientierte) Substrate genutzt werden, auf denen direkt die selbstorganisierten Halbleiter-Quantenstrukturen entstehen. Die grundlegenden Modelle zur Entstehung der unterschiedlichen Quantenstruktur-Morphologien durch selbstorganisiertes Wachstums werden in Abschnitt 3.3 beschrieben.

Die Herstellung von Halbleiter-Quantenstrukturen bietet den Vorteil, dass direkt auf etablierte Epitaxie-Systeme z.B. der Optoelektronik (beispielsweise die Molekularstrahlepitaxie), die bereits kommerziell hochoptimiert zur Verfügung stehen, zurückgegriffen werden kann. Der Begriff Epitaxie bezeichnet hierbei das geordnete Kristallwachstum, das die vorhandene atomare Ordnung eines einkristallinen Substrats auf die zu wachsende Schicht überträgt. Wird beispielsweise auf ein GaAs-Substrat wiederum GaAs epitaktisch aufgewachsen, so pflanzen sich die perfekte Periodizität und die Orientierung des GaAs-Substrats direkt fort. Im Idealfall ist nach dem epitaktischen Wachstum der Übergang von Substrat und neu aufgewachsenem GaAs nicht mehr zu erkennen. Dieses Wachstum wird als Homoepitaxie bezeichnet. Derartige nichtverspannte Schichten können theoretisch beliebig lang und oft übereinander gewachsen werden, ohne dass sich an der kristallinen Struktur etwas ändert. Im für die Herstellung von Quantenstrukturen relevanteren Fall, der Heteroepitaxie, werden Materialien mit unterschiedlichen Gitterkonstanten aufgewachsen. Zwei bedeutende Verfahren zum epitaktischen Wachstum von Quantenstrukturen sind die metallorganische Gasphasenepitaxie und die Molekularstrahlepitaxie. Das Funktionsprinzip der Molekularstrahlepitaxie wird im Folgenden näher erläutert, da die in dieser Arbeit untersuchten Quantenstrukturen mit diesem Verfahren hergestellt worden sind.

Die Molekularstrahlepitaxie ist prinzipiell ein zweistufiger Prozess: Im ersten Schritt gelangen (aus Feststoff- oder Gas-Quellen unter UHV-Bedingungen erzeugte) gerichtete

Molekularstrahlen des aufzuwachsenden Materials auf das geheizte Substrat. Die Partikel sollen hierbei im Strahl weder miteinander wechselwirken noch chemisch reagieren. Das geheizte Substrat wird üblicherweise während dieses ballistischen Molekularflusses ständig rotiert, um lokalen Inhomogenitäten entgegenzuwirken. Im wichtigen zweiten Schritt erfolgt die eigentliche Epitaxie. Die wichtigsten Prozesse, die während der Epitaxie ablaufen, sind (nach Herman und Sitter [He89]):

- Die Adsorption der Atome / Moleküle des Molekularstrahls
- Die Oberflächenmigration und die Dissoziation der Moleküle
- Die Nukleation
- Der Kristalleinbau der Atome
- Die thermische Desorption der nicht in den Kristall eingebauten Atome

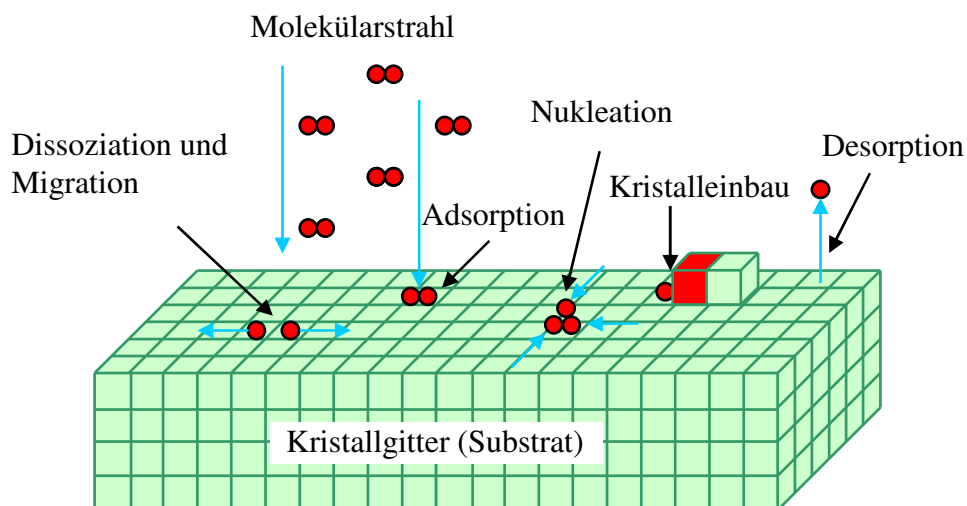


Abb. 3.2 Schematische Darstellung der wichtigsten Molekularstrahlepitaxie-Prozesse

Eine schematische Darstellung der aufgelisteten Prozesse auf der Oberfläche eines Substrats zeigt Abb. 3.2. Großen Einfluss auf den Verlauf des Wachstumsprozesses nehmen die Oberflächentemperatur, die Abscheiderate, das Oberflächenmaterial und dessen Beschaffenheit und die kristallographische Substrat-Orientierung.

Die Methode der Molekularstrahlepitaxie ist ein vor allem kinetisch kontrollierter Nicht-Gleichgewichtsprozess, dessen makroskopischer Endzustand von vielen kinetischen Einzelprozessen abhängt [Ve84]. In der Literatur existieren verschiedene Modelle zur

Simulation des Wachstums, basierend auf unterschiedlichen physikalischen Annahmen. Es sei angemerkt, dass die z.Z. existierenden Modelle das Wachstumsverhalten bisher nicht vollständig wiedergeben können. Ein Simulationsansatz beruht auf sehr rechenintensiven Monte-Carlo-Simulationen, die, basierend auf der Wahrscheinlichkeit bestimmter Ereignisse, die unterschiedlichen Prozesse (z.B. Adsorption, Migration) für eine Vielzahl einzelner Partikel des Molekularstrahls durchrechnen [Ma04]. Der kinetisch kontrollierte Nicht-Gleichgewichtsprozess unterscheidet die MBE z.B. grundsätzlich von der Kristall-Herstellung aus flüssigen Lösungen, bei der durch Volumen-Diffusionsprozesse in der Lösung stets quasi ein Gleichgewichtsprozess stattfindet. Das Wachstumsverhalten eines Gleichgewichtsprozess wird quasi ausschließlich durch thermodynamische Gesichtspunkte bestimmt. Allerdings zeigt sich, dass auch beim Nicht-Gleichgewichtsprozess des epitaktischen Wachstums thermodynamische Effekte eine große Rolle spielen, auch wenn die Einstellung des Gleichgewichtszustands kinetisch kontrolliert bleibt [Ko02].

3.3 Entstehung unterschiedlicher Morphologien

Basierend auf thermodynamischen Überlegungen sind nach Bauer prinzipiell drei unterschiedliche Wachstumsmodi zu unterscheiden [Ba58]: Beim Frank-van-de-Merwe-Wachstum findet das Wachstum auf dem Substrat Monolage für Monolage statt. Energetisch betrachtet kann sich eine neue Monolage erst bilden, wenn die vorherige vollständig abgeschlossen ist [Fr49]. Es können quasi beliebig dicke Schichten gewachsen werden (siehe Abb. 3.3, links). Dieses Wachstum findet sowohl bei der Homoepitaxie statt (also beim Aufwachsen des identischen Materials), als auch beim leicht verspannten pseudomorphen Kristallwachstum. Beim defektfreien pseudomorphen Wachstum verformt sich die Einheitszelle des aufzuwachsenden Kristalls so, dass sich die Gitterkonstante horizontal dem Substrat anpasst. Das Volumen der Einheitszelle bleibt hierbei erhalten, es ändert sich dadurch deren Ausdehnung in Wachstumsrichtung. Das pseudomorphe Wachstum kann allerdings nur bis zu einer kritischen Schichtdicke fortgesetzt werden. Danach kommt es durch Gitterrelaxation zu Versetzungen und / oder zum 3-D-Wachstum. Wird durch stärker verspannte Materialsysteme ein 3-D-Wachstum erzwungen, spricht man vom Stranski-Krastanow-Wachstumsmodus [St38] (siehe Abb. 3.3, Mitte). In diesem Modell entstehen zunächst eine sogenannte Wetting Layer (bestehend aus einer oder mehreren pseudomorphen Monolagen) und anschließend ausgeprägte 3-D-Inseln. Je nach Wachstumsparametern können die hergestellten Inseln kohärent (also ohne jegliche

Versetzungen) in die Matrix des umgebenden Kristalls eingebaut werden. Ein drittes Modell, in dem ausschließlich 3-D-Inseln entstehen, wird Volmer-Weber-Wachstumsmodus genannt [Vo26]. Energetisch günstiger ist hier die sofortige Ausbildung von 3-D-Inseln. Ausgehend von Keimzentren nimmt die Größe dieser Inseln weiter zu, bis die Strukturen schließlich miteinander verschmelzen. Die Oberfläche wird zunächst aber nicht vollständig bedeckt.

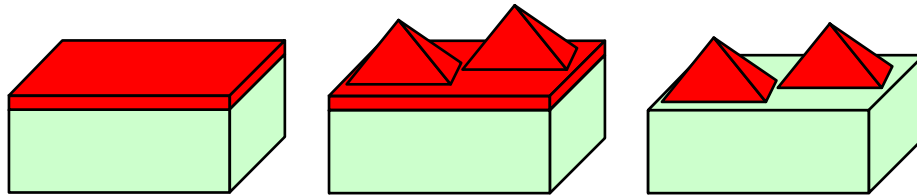


Abb. 3.3 Schematische Darstellung der Wachstums nach Frank-van-de-Merwe (links), Stranski-Krastanow (mittig) und Volmer-Weber (rechts)

Da allerdings die MBE eine Methode ist, in der das Kristallwachstum weitab vom thermodynamischen Gleichgewicht realisiert wird, spielen (wie bereits oben erwähnt) Nichtgleichgewichtsprozesse bei der Ausbildung der 2-D Schicht, der Selbstorganisation der QD-Struktur und beim Überwachsen eine große Rolle. Angemerkt sei, dass das oft verwendete Bild des Stranski-Krastanow-Wachstums (aus der pseudomorph gewachsenen 2-D Schicht erheben sich ab einer kritischen Schichtdicke 3-D Inseln) die Komplexität der Selbstorganisation von Quantenstrukturen anschaulich, aber leider nicht vollständig beschreibt [Wa00a]. Beispielsweise konnten Costantini et al. zeigen, dass das Wachstumsverhalten von InAs/GaAs-QDs sehr gut durch den Stranski-Krastanow-Wachstumsmodus (thermodynamisches Verhalten) beschrieben wird, sofern hohe Wachstumstemperaturen und geringe Wachstumsraten gewählt werden [Co03]. Kratzert hingegen beobachtete kinetisch dominiertes Wachstumsverhalten bei CdSe/ZnSe-QDs, obwohl die Materialsysteme InAs/GaAs und CdSe/ZnSe sehr ähnliche Verspannungswerte aufweisen und sich daher prinzipiell identisch verhalten sollten [Kr02]. Die Entstehung dieser QDs kann durch die in Abb. 3.3 schematisch dargestellten Wachstumsmodelle nicht vollständig beschrieben werden.

Die Entstehung von QDashes und Qrings kann ebenfalls nicht allein durch thermodynamisches Verhalten verstanden werden. Bei QDashes bewirkt u.a. die Wachstumskinetik, dass das laterale Wachstum im Vergleich zum vertikalen Wachstum wahrscheinlicher ist. Aufgrund von Asymmetrien in der Gitterstruktur können sich

QDashes z.B. entlang bestimmter Kristallrichtungen [Ba04, Go04] oder auch entlang von Stufen im Substrat [Zi02] ausbilden. Die Entstehung ringförmiger Quantenstrukturen ist durch verschiedene Effekte möglich. Im häufig untersuchten Materialsystem InAs/GaAs können Qrings entstehen, indem zuerst gewöhnliche Inseln (QDs) wachsen, anschließend werden diese dann durch einen speziellen Prozessschritt in Qrings transformiert. Diese Transformation wird durch ein teilweises Überwachsen mit GaAs und anschließendes Erhitzen der Probe verursacht. Lorke et al. beschreiben den hierbei stattfindenden Prozess als nanoskopische Vulkaneruption [Lo01]. Diese bildhafte Beschreibung beinhaltet, dass das In aus der Mitte der Insel nach Abschluss des Erhitzens diffundiert. Die hier stattfindenden Prozesse beinhalten sowohl thermodynamisches als auch kinetisches Verhalten [Lo02]. In anderen Materialsystemen (z.B. CdTe/ZnTe [Ki04] und GaSb/GaAs [Ko04]) bilden sich Qrings teilweise direkt selbstorganisiert ohne weitere Wachstumsschritte aus. Ein abschließendes epitaktisches Überwachsen der entstandenen Quanten-Strukturen ist in allen Morphologien möglich. Wichtige Herausforderungen bei der Herstellung der selbstorganisierten Strukturen sind zum einen das möglichst versetzungsfreie Überwachsen, und zum anderen das Erhalten möglichst homogener selbstorganisierter Quantenstrukturen innerhalb einer Probe. Zwei wichtige Methoden, die durch eine verbesserte Wachstumskontrolle über selbstorganisierte Quantenstrukturen motiviert sind, werden hierzu im Folgenden vorgestellt.

3.3.1 Prinzip „Vertical Stacking“

Beim Vertical Stacking werden Lagen selbstorganisierter Quantenstrukturen durch relativ dünne Barrierschichten räumlich voneinander getrennt. Durch das epitaktische Wachstum der Barrieren pflanzt sich, ausgehend von der untersten Quantenstruktur-Lage, die Verspannung durch die Barriere teilweise fort. Hierdurch können sich für die Quantenstrukturen der nächsten Lagen energetisch begünstigte Wachstumsstellen (z.B. direkt über den darunterliegenden Quantenstrukturen) bilden. In Übereinstimmung hierzu beobachteten Goldstein et al. die bevorzugte selbstorganisierte Ausbildung von QDs in höheren Lagen direkt über darunterliegenden QDs [Go85]. Xie et al. demonstrierten, dass die InAs-QDs der höheren Lagen durch Vertical Stacking eine deutlich homogenere Größenverteilung aufweisen [Xi95]. Grund ist das Erreichen eines Gleichgewichtszustands des Wachstums. Hierzu wurde von Tersoff theoretisch begründet, dass das Erreichen des Gleichgewichtszustands die Größe von QDs der höheren Lagen im Vergleich zur durchschnittlichen Größe der QDs der ersten Lage sowohl vergrößern als auch verkleinern

kann, bis der Wachstumsgleichgewichtszustand sukzessive erreicht ist [Te96]. Der Ausdehnung der Barrierenschicht kommt hierbei eine Schlüsselrolle zu. Beispielsweise ist der Effekt der (in Bezug auf die untere Wachstumslage) korrelierten Anordnung der Quantenstrukturen bei Barriedicken ab 25 nm üblicherweise vernachlässigbar. Bei geringeren Barriedicken (<25 nm), verbunden mit geringeren Verspannungen, stellt sich die gewünschte Erhöhung der Homogenität ebenfalls nicht immer ein. Ein Beispiel, in dem Vertical Stacking nicht zu einer Homogenisierung geführt hat, ist in Abb. 3.4 aufgezeigt. Die Z-Kontrastaufnahme zeigt die Querschnittsansicht von vier InAs-QDash-Lagen. Die InAs-QDashes (helle Objekte in Abb. 3.4) selbst sind in einer zu InP-gitterangepassten InGaAs-QW-Schicht (angedeutet durch die gestrichelten Linien in Abb. 3.4) vollständig eingewachsen. Die QW-Schichten werden wiederum durch InP-gitterangepasste

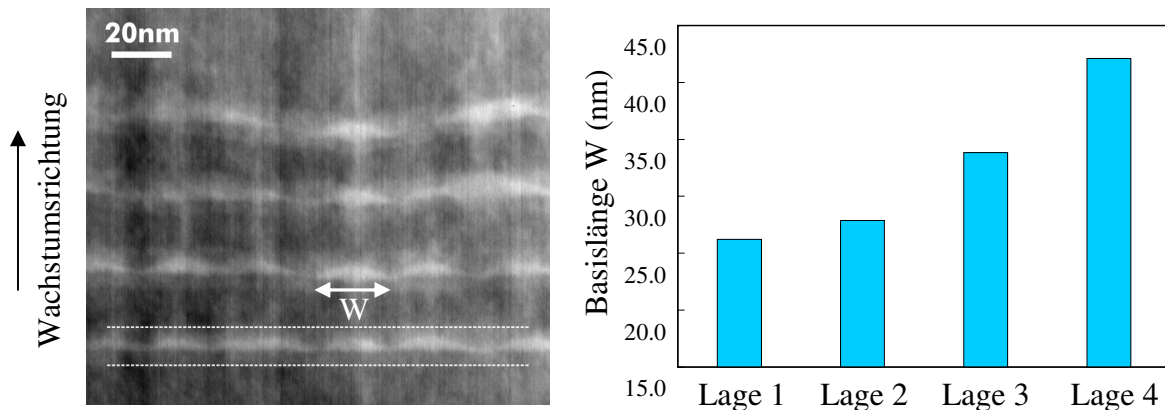


Abb. 3.4 Z-Kontrast-Querschnittsaufnahme einer Probe mit vier QDash-Lagen und Histogramm der Basislänge der vier QDash-Lagen

InGaAlAs-Barrieren (Dicke = 10 nm) räumlich voneinander getrennt. Vergleicht man die vier Quantenstrukturlagen in Abb. 3.4 miteinander, ist zu erkennen, dass die QDashes der unteren Lagen deutlich homogener und kleiner gewachsen sind im Vergleich zu den QDashes der oberen Lagen. Eine systematische Auswertung der Querschnittsgröße (Basislänge der näherungsweise dreieckigen Querschnittsform) zeigt das Histogramm in Abb. 3.4. Hier ist zu erkennen, dass mit zunehmender Lagenfolge die Strukturgröße immer stärker zunimmt. Betrachtet man den Trend der Größenzunahme, muss festgestellt werden, dass das Erreichen des Wachstumsgleichgewichts hier noch nicht zu erkennen ist. Zudem zeigen sich teilweise fast schon Verklumpungen, so dass auch eine Zunahme der Homogenität in diesem Fall nicht beobachtet werden kann.

3.3.2 Die „Indium-Flush“ Methode

Während die Methode des Vertical Stacking die Größenhomogenität durch das Erreichen eines Gleichgewichtszustands erlangt (hier werden daher mehrere QD-Lagen benötigt), geht man bei der Indium-Flush Methode den umgekehrten Weg: Wasilewski et al. konnten die Größe jeder einzelnen QD-Lage durch einen Zwischenschritt quasi zurechtschneiden [Wa99]. Hierzu wird, wie in Abb. 3.5 dargestellt, nach dem Aufbringen des quantenstrukturbildenden Materials (z.B. InAs) zunächst nur ein Teil der Barriere (z.B. 5 nm GaAs) aufgewachsen. Anschließend folgt der Indium-Flush-Schritt, bei dem die Probe während eines Wachstumsstopps über einen kurzen Zeitraum relativ stark erhitzt wird (z.B. 600°C statt einer üblichen Wachstumstemperatur von 500°C; Dauer ca. 1 min). Vereinfacht dargestellt führt dies dazu, dass der obere Teil der selbstorganisierten

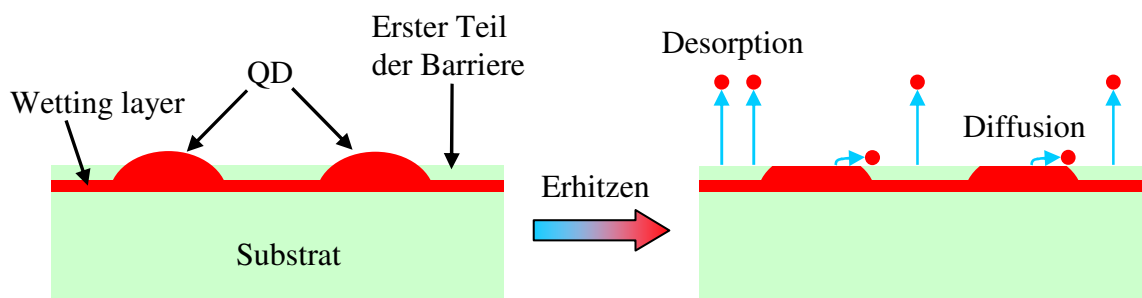


Abb. 3.5 Schematische Darstellung des Indium-Flush-Schritts

(in diesem Beispiel InAs-) Quantenstrukturen wegdiffundiert und über die gesamte Ga-Oberfläche verteilt wird. Das Indium desorbiert schließlich und lässt scheibchenartige Quantenstrukturen zurück, deren Höhe nun durch die Höhe des bereits aufgewachsenen Teils der Barriere festgelegt ist (siehe Abb. 3.5). Anschließend wird der Rest der Barriere (z.B. weitere 5 nm GaAs) aufgewachsen, und anschließend kann die gleiche Prozedur für die nächste QD-Lage durchgeführt werden. Anwendung findet die Indium-Flush Methode z.B. bei der Herstellung möglichst identischer Quantenstrukturen. Bei sogenannten QD-Molekülen (QDMs) werden mehrere (z.B. zwei) identische QDs so nahe zusammengebracht, dass sich im Idealfall die Wellenfunktionen der Elektronen bzw. der Löcher über das gesamte QDM erstrecken können. Beispielsweise konnten Stinaff et al. Molekülverhalten für die Wellenfunktion des optisch angeregten Löchergrundzustands eines QDMs zeigen, das mittels Indium-Flush Methode hergestellt worden ist [St06].

Die RTM-Aufnahme einer QDM-Struktur mit zwei nominell identischen QDs, die mittels Indium-Flush Methode hergestellt wurden (getrennt durch eine Barrierenschichtdicke von nominell 6 nm), ist exemplarisch in Abb. 3.6 (links) gezeigt. Dargestellt ist hier eine Z-Kontrast-Querschnittsaufnahme von zwei vertikal korrelierten QDs. In der Mikroskopaufnahme wurden die hergestellten QDs durch eine schwarze Umrandung nachträglich gekennzeichnet. Zusätzlich dargestellt sind in Abb. 3.6 (rechts) zur besseren Visualisierung zwei Helligkeitsprofile (von A nach B und von C nach D).

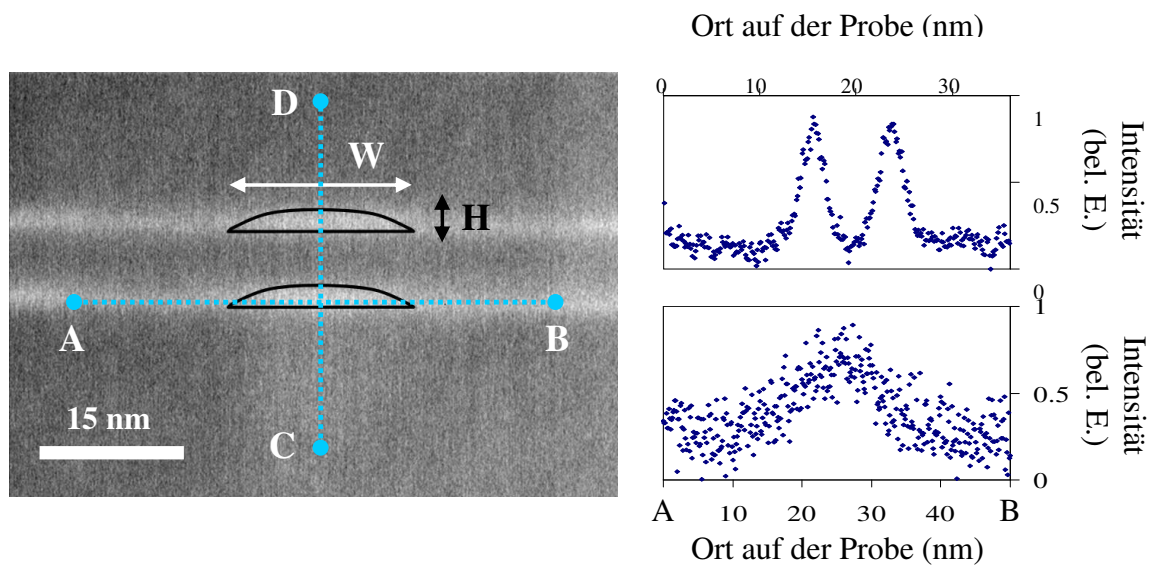


Abb. 3.6 Links: Z-Kontrast-Querschnittsaufnahme von zwei QD-Strukturen (durch schwarze Umrandung nachträglich gekennzeichnet), hergestellt durch Indium-Flush Methode. Rechts: Zugehörige Bildhelligkeitsprofile von A nach B und von C nach D

Erschwert wird das Erkennen der QD-Ausdehnung (und QD-Position) durch die relativ ausgeprägte Wetting Layer in beiden Lagen. Um objektiv die QD-Geometrien aus solchen Z-Kontrastaufnahmen bestimmen zu können, ist es zweckmäßig, diesen Teil der Auswertung zu automatisieren. Die Bildauswertung durch Analyse der entsprechenden Helligkeitsprofile kann mit der hierzu entwickelten Software Nanomess (siehe Anhang) systematisch und reproduzierbar durchgeführt werden. Die nominell zu wachsende QD-Querschnittshöhe der QDs betrug jeweils 2.5 nm. Experimentell wurde mit dem Programm Nanomess (siehe Anhang A) aus den Z-Kontrastaufnahmen der gezeigten Strukturen in beiden QD-Lagen eine QD-Querschnittshöhe von ebenfalls 2.5 nm gemessen.

Dieses Beispiel verdeutlicht, wie exakt das Einstellen von QD-Höhen durch die Indium-Flush Methode möglich ist. Die Spitzen der QDs in den beiden Lagen sind durch den Indium-Flush-Schritt quasi identisch abgetragen worden. Des Weiteren wird natürlich auch innerhalb einer einzelnen QD-Lage mittels eines Indium-Flush-Schritts eine Anpassung der QD-Höhen und somit eine Homogenisierung bewirkt. Abschließend soll angemerkt werden, dass die Indium-Flush Methode ebenfalls dazu geeignet ist, ringförmige Quantenstrukturen herzustellen. Ist die Erhitzungsdauer des Indium-Flush-Schritts relativ lang gewählt, kann der mittlere Bereich der scheibchenartigen Quantenstrukturen ebenfalls durch Diffusionsprozesse abgetragen werden, zurück bleibt der äußere Teil des QDs als flache ringförmige Quantenstruktur [Lo00].

Prinzipiell fehlt nach dem Überwachsen der Proben allerdings die essentielle Information des Endzustands der Selbstorganisation (Größe, Morphologie, Chemie). Einen Zugang zu den hergestellten überwachsenen winzigen Quantenstrukturen ermöglicht die Raster-Transmissionselektronenmikroskopie. Die hohe Ortsauflösung der RTEM-Messmethoden (siehe Abschnitt 2.2) ermöglicht die Analyse und das Verständnis des Wachstumsprozesses ausgehend vom tatsächlichen Endzustand der Quantenstrukturen nach der Herstellung (z.B. anhand direkter Abbildungen der entstandenen Quantenstrukturen). Die sich ergebenden Morphologien der Quantenstrukturen und die sich einstellenden Größen und Größenverteilungen können direkt aus RTEM-Messungen extrahiert werden. Um zu den hergestellten Quantenstrukturen messtechnischen Zugang mit dem RTEM zu erlangen, ist eine spezielle Probenpräparation notwendig, die im folgenden Abschnitt vorgestellt wird.

3.4 Probenpräparation für die Raster-Transmissionselektronenmikroskopie

Ziel der Probenpräparation für die Raster-Transmissionselektronenmikroskopie ist, die Probenbereiche der jeweils interessierenden Quantenstrukturen oder Schichten so zu dünnen, dass die Primärelektronen des Elektronenstrahls diese Probenbereiche durchstrahlen können. Um unerwünschte Mehrfachwechselwirkungen in der Probe zu vermeiden, entspricht die theoretisch anzustrebende Probendicke der mittleren freien Weglänge der Primärelektronen im Material. Für das verwendete RTEM (mit einer Beschleunigungsspannung von 100 kV) bedeutet dies, dass die Proben auf eine Dicke von

etwa 45 nm gedünnt werden müssen. Des Weiteren sollte die Dicke der präparierten Proben innerhalb des zu untersuchenden Bereichs möglichst homogen sein, damit ein geeignetes Messgebiet entsteht. Ein trivial anmutender aber technologisch anspruchsvoller Aspekt der Probenpräparation ist, dass für einen Präparationsversuch nicht mehr Probenmaterial als unbedingt nötig verwendet werden sollte. So kann im Falle einer missglückten Präparation ein weiterer Anlauf durchgeführt werden. Vor Beginn der eigentlichen Präparation muss zudem bereits festgelegt werden, aus welcher Perspektive die mikroskopischen RTEM-Messungen erfolgen sollen, da dies stellenweise unterschiedliche Präparationsschritte erfordert. Werden von einer Probe beispielsweise Querschnittsaufnahmen (cross sectional view) und Draufsichtsaufnahmen (plan view) benötigt, so müssen zwei Probenstücke unterschiedlich präpariert werden. Die Prozesse der hierfür durchzuführenden Präparationsschritte werden im Folgenden erläutert.

3.4.1 Querschnittspräparation

Für das hier eingesetzte Verfahren zur Anfertigung von Querschnittspräparaten wird prinzipiell nur ein Probenstück mit den Abmessungen 1 mm mal 3 mm benötigt. Die Probenstücke werden aus dem Wafer entweder durch Spalten oder bei sehr harten Proben durch Sägen herausgelöst. Anschließend muss aus Gründen der Stabilität und Handhabbarkeit das Probenstück stirnseitig gegen ein zweites Probenstück oder einen Dummy geklebt werden (siehe Abb. 3.7). Im Falle eines Dummies sollte dieser allerdings zumindest aus identischem Substrat bestehen, um eine homogene Abtragung beider Stücke zu ermöglichen. Als Klebstoff kommen je nach Härte der Proben verschiedene Zwei-Komponentenkleber zum Einsatz. Für weichere Proben (z.B. GaAs- oder InP-Substrate) wird „UHU endfest 300“ verwendet. Sehr harte Proben (z.B. Saphir oder Siliziumkarbid-Substrate) werden mit dem Zwei-Komponenten-Spezialklebstoff „Gatan Epoxy G1“

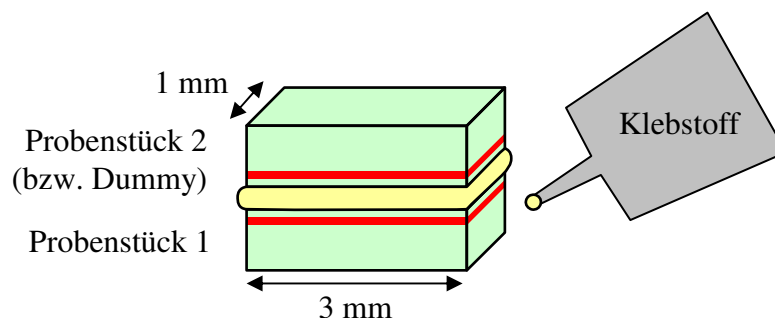


Abb. 3.7 Stirnflächig übereinander geklebte Probenstücke

zusammengeklebt, um der größeren mechanischen Beanspruchung während der Probenpräparation standzuhalten.

Wie in Abb. 3.8 (links) dargestellt, wird dieses Probensandwich anschließend mit Wachs mittig auf einen Glaszylinder aufgeklebt. Diese Konstruktion kann nun in einen speziell für (R)TEM-Präparationen konstruierten Schleifapparat „Gatan Disc Grinder“ eingebaut werden, der auf 5 μm genau die Änderung der Probendicke anzeigen kann. Nun wird mit diesem Schleifapparat die erste Kante des Probensandwichs zunächst mittels

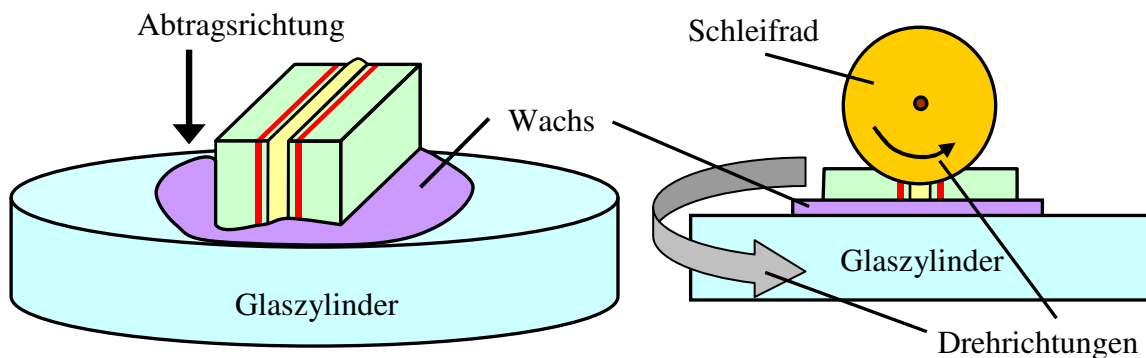


Abb. 3.8 Mit Wachs auf Glaszylinder aufgeklebte Probenstücke (links) und schematische Darstellung des Dimple Grindings mittels Schleifrad (rechts)

groben Schleifpapiers (1200er Körnung) plan geschliffen. Abschließend kommen der Reihe nach Schleifpapier der Körnung 2500 und schließlich 4000 zum Einsatz. Damit diese Probenkante auch von den letzten Kratzern befreit ist, wird die Kante anschließend mittels Diamantpaste (1 μm -Korngröße) poliert. Anschließend wird das Wachs durch Erhitzen kurz angeschmolzen und die Probe auf die nun planparallele Probenkante gestellt. Die nun nach oben zeigende unbehandelte Seite wird wiederum mittels groben Schleifpapiers im Schleifapparat auf eine Dicke von ca. 90 μm heruntergeschliffen. Im nächsten Präparationsschritt wird der Glaszylinder in den „Gatan Dimple Grinder“ eingebaut. Der Dimple Grinder (Muldenschleifgerät) besitzt einen Drehteller, der den Glaszylinder im Kreis dreht, zusätzlich wird über einen Hebelarm ein Schleifrad senkrecht von oben auf die Probe geführt, das sich ebenfalls um seine Achse dreht (Abb. 3.8 rechts). Durch diese Anordnung kann mittels des Dimple Grinders eine kreisrunde Mulde mit sehr hoher Tiefengenauigkeit (2 μm) in die Probe geschliffen werden. Dieses Verfahren ermöglicht es, sehr dünne Schichten mechanisch zu schleifen, ohne dass die Proben

auseinander brechen. Üblicherweise besitzt die Probe unter der Mulde nach dieser Prozedur eine Dicke von ca. 45 μm .

Für die Stabilität nach dem letzten Präparationsschritt muss zunächst noch ein offener Metallring (Durchmesser 3.05 mm) als Halterung mittig (siehe Abb. 3.9) auf die Proben aufgeklebt werden. Da dieser Ring die Proben dauerhaft und vor allem auch unter Messbedingungen zusammenhalten muss, wird hierzu der elektronenstrahlfeste Zwei-Komponenten-Speziellkleber „Vishay M-Bond 610“ verwendet. Nachdem die Probe durch Chloroform vom Glaszylinder gelöst und vom Wachs gereinigt wurde, erfolgt der letzte und wichtigste Präparationsschritt, das Argon-Ionen-Dünnen. Hierzu wird die Probe

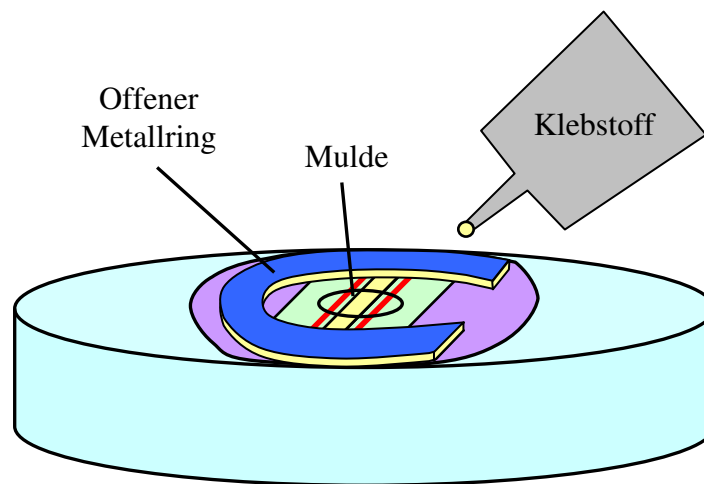


Abb. 3.9 Aufkleben eines offenen Rings auf die Probe nach Dimple Grinding

in die Ionendünnungsanlage Gatan PIPS (Precision Ion Polishing System) eingebaut. In dieser Anlage werden unter Vakuumbedingungen mittels zweier Ionenkanonen Ar-Ionen mit bis zu 6 keV unter einstellbaren Winkeln (α) auf die sich drehende Probe beschleunigt (siehe Abb. 3.10 links). Die besten Ergebnisse liefert eine zweistufige Beschuss-Prozedur: Zunächst werden Ar-Ionen mit 6° (von oben) und -4° (von unten) mit 5 keV auf die Probe geschossen, bis sich ein kleines Loch in der Mitte der Probe andeutet. Dann erfolgt die Reduzierung der Beschleunigungsenergie auf 3 keV und es wird mit flacheren Winkeln (5° und -1°) ein etwa 0.5 mm großes Loch in die Probe geschossen. Da diese flachen Winkel die besten Ergebnisse erreichen, ist damit auch klar, dass zum Zusammenhalten der Proben ein geöffneter Ring verwendet werden muss, da die von oben kommenden Ar-Ionen sonst durch den Ring blockiert würden. Erreichen nun die Ausmaße dieses Lochs den Klebespalt

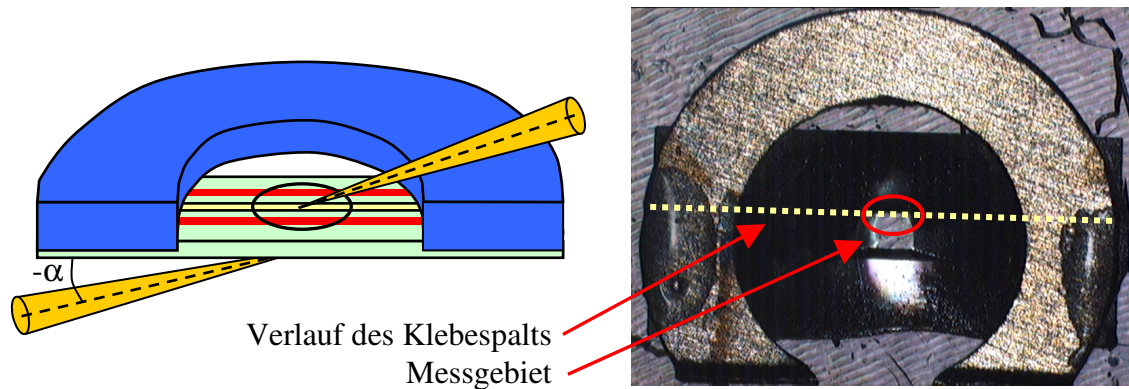


Abb. 3.10 Ar-Ionen-Beschuss des Präparats im letzten Präparationsschritt (links) und Foto einer fertig präparierten Probe mit angedeutetem Verlauf des Klebespalts und Messgebiet

(siehe Abb. 3.10 rechts), hat man die Probe im Bereich der interessierenden Strukturen bzw. Schichten (am Rand des Lochs) auf unter 45 nm gedünnt und kann daran Querschnitts-RTEM-Messungen durchführen.

3.4.2 Draufsichtspräparation

Im Gegensatz zu den drei Präparationsschritten (mechanisches Schleifen, Dimple Grinding und Ionen-Dünnen) für Querschnitte wird für Draufsichten lediglich der letzte Präparationsschritt, das Ar-Ionen-Dünnen benötigt. Der große Vorteil bei Draufsichtspräparationen ist, dass die Probenoberflächen bereits durch das Probenwachstum eben sind und größere Rauigkeiten quasi nicht vorhanden sind. Um die Oberfläche und somit die interessierenden Strukturen bzw. Schichten – die meist nur wenige Nanometer unter der Oberfläche sind – nicht zu beschädigen, wird zudem auf das mechanische Abschleifen der Substratseite verzichtet. Auf ein 1 mm mal 3 mm großes Probenstück wird direkt der Metallring aufgeklebt (siehe analog Abb. 3.9) und die noch unbehandelte Probe wird direkt in die Ionen-Dünnungsanlage eingebaut. Das Dünnen erfolgt zunächst ausschließlich substratseitig mit Energien von 5 keV (Winkel: 5° von unten), was im Falle harter und/oder dicker Substrate stetigen Beschuss mit Ar-Ionen von 10 Stunden oder mehr benötigt (siehe hierzu ergänzend auch Kapitel 3.4.3). Analog zur Querschnittspräparation erfolgt (nachdem ein Loch in der Probe erkennbar ist) die abschließende Reduzierung der Beschleunigungsenergie auf 3 keV und es wird mit flacheren Winkeln (5° (von oben) und -1° (von unten)) ein etwa 0.5 mm großes Loch in die Probe geschossen (siehe analog Abb. 3.10). Anzumerken ist, dass Draufsichts-

präparationen zwar technisch leichter erscheinen, aber häufig nicht von Erfolg gekrönt sind, da die Winkel der Ionen-Dünnungsanlage für eine gute Präparationsqualität nicht verändert werden sollten. Befindet sich die interessierende Struktur in einer ungünstigen Tiefe unter der Oberfläche, kann es vorkommen, dass die gesuchte Struktur entweder vom Ionenstrahl mitweggedünnt wird oder dass zuviel weiteres Material die RTEM Untersuchungen unmöglich macht. Querschnittspräparationen erfordern hingegen, wie im vorherigen Kapitel gezeigt, mehr Aufwand, führen dafür aber prinzipiell stets zur entsprechenden Dünnung der interessierenden Schichten.

3.4.3 Chemisch unterstütztes Ionenstrahl-Ätzen

Beschleunigen kann man das Abtragen dicker Schichten je nach Substratmaterial durch das chemisch unterstützte Ionenstrahl-Ätzen (CAIBE, Chemical Assisted Ion Beam Etching) wie Bharadwaj et al. zeigten [Bh92]. Definierte Mengen bestimmter anderer Elemente (in der verwendeten PIPS z.B. Iod) werden hierzu ins Vakuum (ca. 10^{-5} mbar) der Ionendünnungsanlage eingebracht, was die Abtrag-/Ätzrate deutlich erhöht. Das Zusetzen von Iod kann zudem auch für Querschnittspräparate von Proben beispielsweise mit InP-Substraten sinnvoll sein. So zeigt sich bei der Präparation von InP-Substraten (z.B. QDash-Proben in Kapitel 7), dass auch in den Querschnittspräparaten durch Iod-Zusatz deutlich homogenere Messgebiete entstehen. Technisch betrachtet ist CAIBE relativ einfach durchzuführen: Hierzu wird an die Ionendünnungsanlage ein mit pulverförmigem Iod gefülltes Reservoir angebracht und dieses durch ein Ventil mit dem Vakuumbereich der Ionendünnungsanlage verbunden. Mit Hilfe des Ventils wird anschließend das Vakuum in der Ionendünnungsanlage durch das ausströmende Iod kontrolliert verschlechtert. Somit ist ein gleichmäßiger Iod-Zusatz gewährleistet und die Proben werden chemisch unterstützt gedünnt.

4 Morphologie optimierter InAs/InGaAs-„Dot in a Well“-Strukturen

Eine der vielversprechendsten Anwendungen von Quantenstrukturen ist deren Einsatz als aktives Medium in Laser-Dioden. Von besonderer anwendungsbezogener Bedeutung sind hierbei Quantenstruktur-Laser-Dioden mit Emissionswellenlängen in den wichtigen Telekommunikationsfenstern (0.85 μm , 1.3 μm und 1.55 μm) für die Datenübertragung über Glasfasernetze [Hu98, Bi99, Kl01]. Selbstorganisierte kohärente InAs-QD-Strukturen gewachsen auf (100)-GaAs-Substrat weisen bei Raumtemperatur typischerweise Emissionswellenlängen um 1 μm auf [Ak04]. Die wichtige Emissionswellenlänge von 1.3 μm kann durch unterschiedliche Variationen der InAs/GaAs-QD-Strukturen erreicht werden.

Huffaker und Deppe realisierten erste bei Raumtemperatur emittierende 1.3 μm -QD-LEDs, indem $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ statt InAs als QD-bildende Schicht verwendet wurde. Ein alternierendes Submonolagenwachstum von InAs und GaAs (Verhältnis 1:1) und stetige Wachstumspausen im Anschluss an die einzelnen Submonolagen führten hier zu der Bildung relativ großer selbstorganisierter QDs (Durchmesser $\sim 50\text{ nm}$), die aufgrund der geringeren Größenquantisierung und der geringeren Verspannung bei 1.3 μm emittierten [Hu98a, Hu98b].

Prinzipiell besteht auch die Möglichkeit, die Emissionswellenlänge ausschließlich durch die Verspannungsverringerung zu erhöhen. Ausgehend von InAs/GaAs-QD-Strukturen kann durch Verwendung verspannungsreduzierender Schichten die Emissionswellenlänge um 1.3 μm eingestellt werden. Liu et al. zeigten, dass das Aufwachsen einer $\text{GaAs}_{0.86}\text{Sb}_{0.14}$ -Schicht unter den InAs-QDs zu einer drastischen Reduzierung der Verspannung und somit zur gewünschten Raumtemperatur-Emission von InAs-QDs von 1.3 μm führte [Li05]. Für praktische Anwendungen ist allerdings der erheblich größere technische Aufwand durch die Epitaxie eines weiteren Elements (Sb) nachteilig.

Ein pragmatischer und vielversprechender Ansatz ist die Herstellung sogenannter In(Ga)As-Dot in a Well (DWell)-Strukturen, in denen ein QD komplett von einer verspannungsreduzierenden Schicht eingeschlossen werden kann. Die Umsetzung dieser Idee und die Herstellung von DWell-Laser-Dioden, basierend auf InAs-QDs in InGaAs-QWs, konnte erstmals von Lester et al. mit Emissionswellenlängen um $1.24\text{ }\mu\text{m}$ demonstriert werden [Le99]. Emissionswellenlängen von $1.3\text{ }\mu\text{m}$ konnten z.B. von Qiu et al. erreicht werden [Qi01]. Prinzipiell zeigt sich, dass die Photolumineszenz-Eigenschaften (PL-Eigenschaften) und die Bauelement-Performance von Laser-Dioden drastisch vom gewählten Design der DWell-Strukturen abhängen. Krebs et al. berichteten basierend auf optischen Messungen, dass ein asymmetrischer Einschluss der QDs in den QW sich vorteilhaft auf die optischen Eigenschaften des DWells auswirkt [Kr03]: Unter anderem konnte neben der PL-Peak-Position auch die notwendige Schwellstromdichte der Strukturen signifikant variiert werden. Der Ursprung dieser phänomenologischen Untersuchungen blieb allerdings unklar. Einen Aufschluss über dieses Verhalten kann mit den RTEM-Methoden gegeben werden.

In diesem Kapitel wird daher mit den Methoden der Raster-Transmissionselektronenmikroskopie analysiert, welche strukturelle Auswirkung die Variation der nominellen QD-Wachstumsposition in einer DWell-Struktur hat. In Abschnitt 4.1 wird zunächst auf das Design der untersuchten DWell-Strukturen eingegangen. Im Anschluss daran werden die RTEM-Analyse (Abschnitt 4.2) der strukturellen Eigenschaften der DWell-Strukturen und abschließend die zugehörigen optischen Eigenschaften (Abschnitt 4.3) vorgestellt.

4.1 „Dots in a Well“-Proben

Zur Bestimmung der optimalen Wachstumsbedingungen sind drei leicht unterschiedliche Proben (A, B und C) mittels MBE auf GaAs-Substrat hergestellt worden (Herstellung durch Krebs et al. / Universität Würzburg). Den schematischen Probenaufbau zeigt Abb. 4.1. Zunächst wurde eine 300 nm Pufferschicht auf das $[001]$ -orientierte GaAs-Substrat aufgewachsen. Anschließend erfolgte die 6-fache Wiederholung des Wachstums der DWell-Bereiche. Die Barrierenschichtdicke ist so gewählt (jeweils 30 nm in Probe A und Probe B und 40 nm in Probe C), dass keine Beeinflussung des QD-Wachstums durch darunterliegende QD-Lagen zu erwarten ist. Die DWell-Bereiche selbst sind, wie in Abb. 4.1 skizziert, in den drei Proben unterschiedlich ausgeführt. Zur Analyse der tatsächlichen

Wachstumsposition wurde die nominelle Dicke der unteren InGaAs-Well-Schicht von 0 nm (Probe A), über 1 nm (Probe B) zu 5 nm (Probe C) variiert. Anschließend erfolgt das Aufbringen von nominell 2.4 ML InAs (QD-bildend). Abgeschlossen wird der DWell-Bereich stets mit 5 nm InGaAs. Hierdurch wird gezielt die Lage des QDs im QW variiert. In Probe A wächst der QD direkt auf GaAs und sollte somit nominell im untersten Bereich

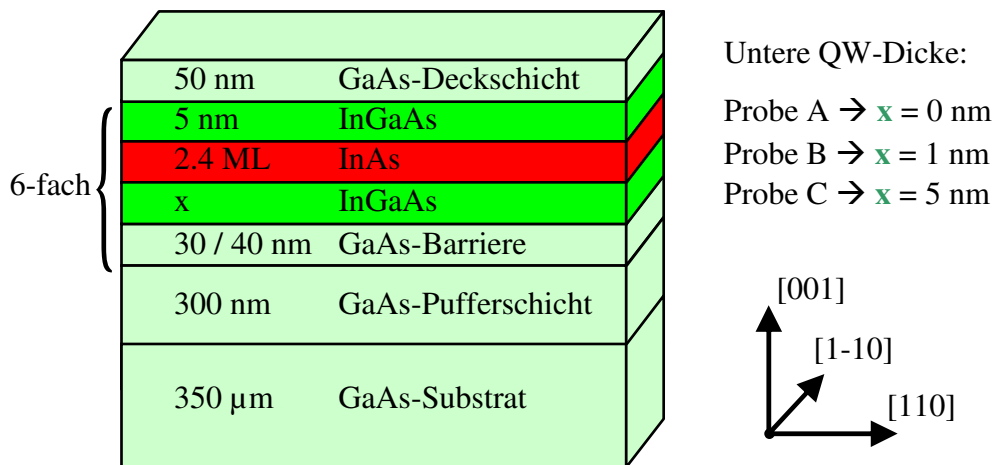


Abb. 4.1 Schematischer Probenaufbau der untersuchten „Dots in a Well“

des DWells selbstorganisiert entstehen. Nominell völlig symmetrisch werden die QDs in Probe C (mit jeweils 5 nm InGaAs unter- und oberhalb des QDs) in den QW eingebettet. Probe B bettet den QD ebenfalls vollständig in die InGaAs-Matrix ein, allerdings ist der QD vertikal (mit einer unteren QW-Schicht von nur einem Nanometer InGaAs) unsymmetrisch eingebettet. Nach den 6 DWell-Bereichen erfolgt abschließend das Überwachsen mit 50 nm GaAs als Deckschicht, um alle DWell-Bereiche vollständig in GaAs einzubetten. Die 6 DWell-Bereiche sind durch die Barrierendicken soweit voneinander entfernt, dass die gegenseitige Beeinflussung vernachlässigt werden kann. Praktisch vorteilhaft ist die 6-fache Wiederholung der DWell-Bereiche zum einen für die optische Charakterisierung aufgrund der erhöhten Signalintensität. Zum anderen erhöht sich die Anzahl mit dem RTEM messbarer DWells ebenfalls um den Faktor 6. In den folgenden Abschnitten dieses Kapitels wird dargestellt, welchen strukturellen Einfluss der untere QW auf die Wachstumsposition des QDs hat. Anschließend werden die ermittelten strukturellen Erkenntnisse mit den Photolumineszenz- und Laser-Eigenschaften der hergestellten Strukturen verglichen.

4.2 Struktureller Einfluss des unteren Quantum Wells

Zur Untersuchung des Einflusses der unteren QW-Dicke auf das QD-Wachstum bietet sich prinzipiell die Auswertung von ordnungszahlsensitiven Z-Kontrastaufnahmen an. Hierdurch können relativ große Probengebiete (einige μm^2) im Rastermodus synchron aufgenommen und anschließend ausgewertet werden. Wie bereits in Abschnitt 2.2.2 erläutert, bestimmt theoretisch die Ordnungszahl die Bildhelligkeit. In den hier untersuchten Proben müssten daher die InAs-QDs am hellsten erscheinen, der InGaAs-QW wäre das zweithellste Objekt und am dunkelsten müsste die Kristallmatrix des GaAs erscheinen. Da diese Zusammenhänge von fundamentaler Bedeutung für sämtliche morphologische Analysen basierend auf Z-Kontrastaufnahmen der In(Ga)As-Quantenstrukturen sind, wird im Folgenden zunächst mittels der chemischen Analysemethode EELS der unmittelbare Zusammenhang zwischen Bildhelligkeit der Z-Kontrastmethode und der Ordnungszahl des abgebildeten Elements demonstriert. Im Anschluss daran kann, basierend auf Helligkeitsprofilen der Z-Kontrastaufnahmen, eine Aussage über die vorliegende Wachstumsposition der QDs getätigt werden.

4.2.1 Gegenüberstellung von Z-Kontrast- und EELS-Messungen

Für die Voruntersuchungen dieses Abschnitts wurden an einer Messstelle in Probe B zunächst Z-Kontrastbilder (siehe exemplarisch Abb. 4.2, rechts) aufgenommen. Anhand der Z-Kontrastabbildung von Barriere, QW und QD kann eine Gegenüberstellung der jeweiligen Z-Kontrast-Bildhelligkeiten mit den entsprechenden Spektren der EELS-Messungen des selben Probengebiets erfolgen. Es erfolgten hierzu EELS-Messungen zentral in den drei verschieden hell erscheinenden Objekten: Barriere (dunkel), QW (heller als Barriere) und QD (hellstes Objekt im Z-Kontrastbild). Gemessen wurden Ga-Spektren, da Ga sowohl in der Barriere als Referenz (nomineller GaAs-Gehalt 100 %) als auch im QW reichhaltig vorhanden ist. Der InAs-QD selbst enthält nominell kein Ga, allerdings ist der QD eingebettet in die Matrix des InGaAs-QWs, wodurch hier bedingt durch die verwendete Messtechnik ebenfalls ein Ga-Signal zu erwarten ist (eine ausführlichere Diskussion über das EELS-Wechselwirkungsvolumen von QDs befindet sich in Abschnitt 5.4). Allerdings müsste das EELS-Signal der Ga-Kante im Bereich des QDs (hellste

Messstelle in der Z-Kontrastaufnahme) ein Minimum annehmen, da nominell ausschließlich Indium den Platz des Gruppe-III-Elements im QD einnimmt.

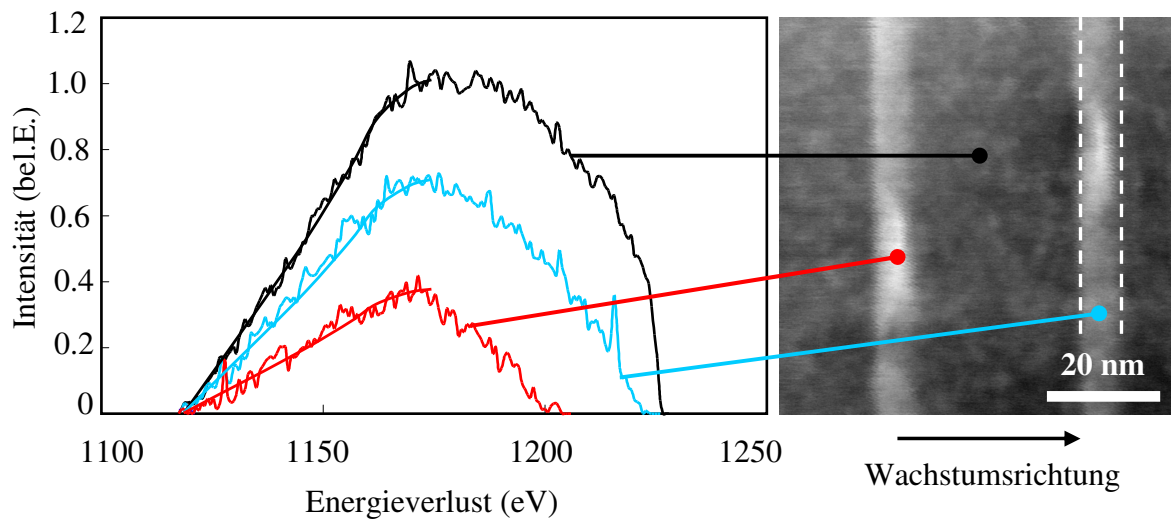


Abb. 4.2 Diagramm (links) der normierten EEL-Spektren (Ga-L-Kante) von Barriere (schwarz), QW (blau) und QD (rot) in Probe B. In der zugehörigen Z-Kontrastaufnahme (rechts) sind die entsprechenden Messpunkte und ein QW (gestrichelt) angedeutet

Die Ergebnisse der normierten EELS-Messungen und die zugehörige Z-Kontrastaufnahme (aufgenommen in [110]-Richtung) zeigt Abb. 4.2. Im Z-Kontrastbild sind zwei DWell-Bereiche zu erkennen, in denen sich jeweils ein QD selbstorganisiert gebildet hat. Im Energieverlustdiagramm zeigt die Messung in der Barriere (schwarz) erwartungsgemäß die höchste Ga-L-Kanten-Intensität, da die Barriere prinzipiell aus reinem GaAs besteht (daher wurde das GaAs-EELS-Spektrum auf 1 normiert). Das nächst hellere Objekt im Z-Kontrastbild ist der InGaAs-QW (gestrichelter Bereich in Abb. 4.2). Wie zu erkennen ist, zeigt hier übereinstimmend die EELS-Messung (blaue Kurve) einen signifikant geringeren Ga-Gehalt an. Das hellste Objekt im Z-Kontrastbild, die Mitte des QDs, ist der Messpunkt des dritten Spektrums. Diese EELS-Messung am QD (rot) zeigt das deutlich schwächste Ga-Signal. Wie theoretisch zu erwarten war, ist zu erkennen, dass die im Z-Kontrastbild besonders hell erscheinenden QDs am wenigsten Gallium und folglich am meisten Indium enthalten. Die Auswertungen der EELS-Spektren führen somit relativ betrachtet zum gleichen Ergebnis bzgl. der Materialverteilung wie die Z-Kontrastaufnahmen. Im Folgenden können daher zur Bestimmung der vertikalen Wachstumsposition des QDs Z-Kontrast-Helligkeitsprofile der verschiedenen Proben gemessen und untersucht werden.

4.2.2 Vertikale Wachstumsposition der Quantum Dots

Zur Analyse des Effekts der Dickenvariation des unteren QWs auf das QD-Wachstum wurden Z-Kontrastbilder der drei Proben A, B und C aufgenommen. Mit den Vorüberlegungen des vorherigen Kapitels kann aus diesen ordnungszahlsensitiven Mikroskopbildern direkt die Wachstumsposition des QDs ermittelt werden. Typische Z-Kontrastaufnahmen zeigt Abb. 4.3 für die drei Proben A (links), B (mittig) und C (rechts). Die Mikroskopbilder für jede Probe enthalten jeweils drei DWell-Bereiche, in denen sich

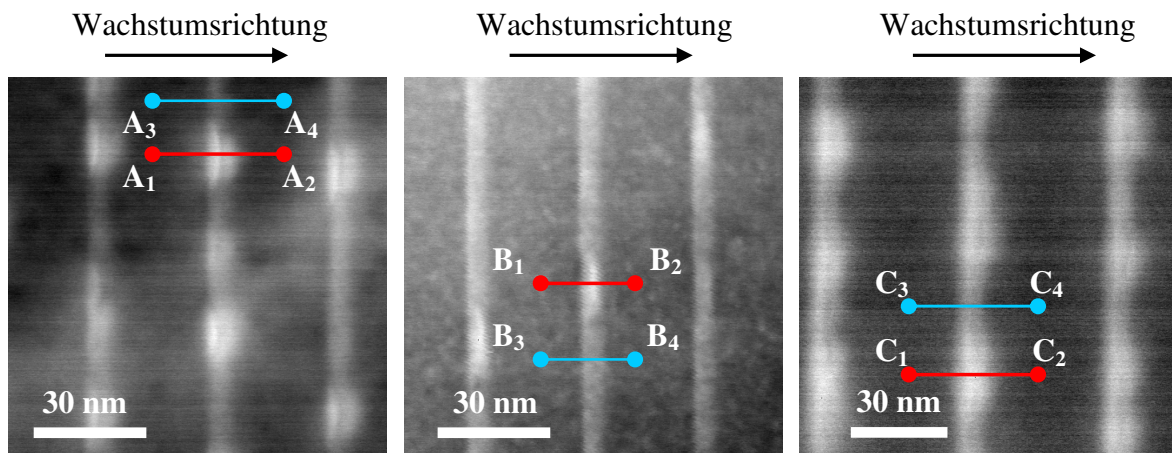


Abb. 4.3 Z-Kontrastaufnahmen der Proben A (links), B (mittig) und C (rechts). Eingezeichnete Linien kennzeichnen Orte der Helligkeitsprofile in Abb. 4.4

einige QDs (hellste Objekte in den Z-Kontrastbildern) selbstorganisiert gebildet haben. Es zeigt sich, dass praktisch keine gegenseitige Beeinflussung (z.B. keine Korrelation der Wachstumspositionen) der verschiedenen DWell-Lagen festgestellt werden kann. Der Abstand der GaAs-Barriere wurde so gewählt, dass das leicht verspannte Wachstum des QWs und das relativ stark verspannte Wachstum der QDs sich nicht auf das Wachstum des nächsten DWell-Bereichs auswirken.

Qualitativ ist in den Z-Kontrastbildern bereits folgendes zu erkennen: Die QDs von Probe B (Abb. 4.3, mittig) sind sehr symmetrisch in den DWell eingebettet. Die Morphologie der entstandenen QDs ist relativ flach und linsenförmig. Die Z-Kontrastbilder von Probe A hingegen (Abb. 4.3, links) lassen erkennen, dass sich hier die QDs vorwiegend im unteren Teil des DWell gebildet haben. Des Weiteren ist hier eine schwach ausgeprägte Doppel-QD-Struktur zu erkennen. Über dem eigentlichen (linsenförmigen) QD zeigt sich in der Z-Kontrastaufnahme ein weiteres helles

Intensitätsmaximum. Die Z-Kontrastaufnahmen in Probe C zeigen ebenfalls (wenn auch weniger stark) dieses Doppel-QD-Verhalten. Hier haben sich etwas größere QDs gebildet.

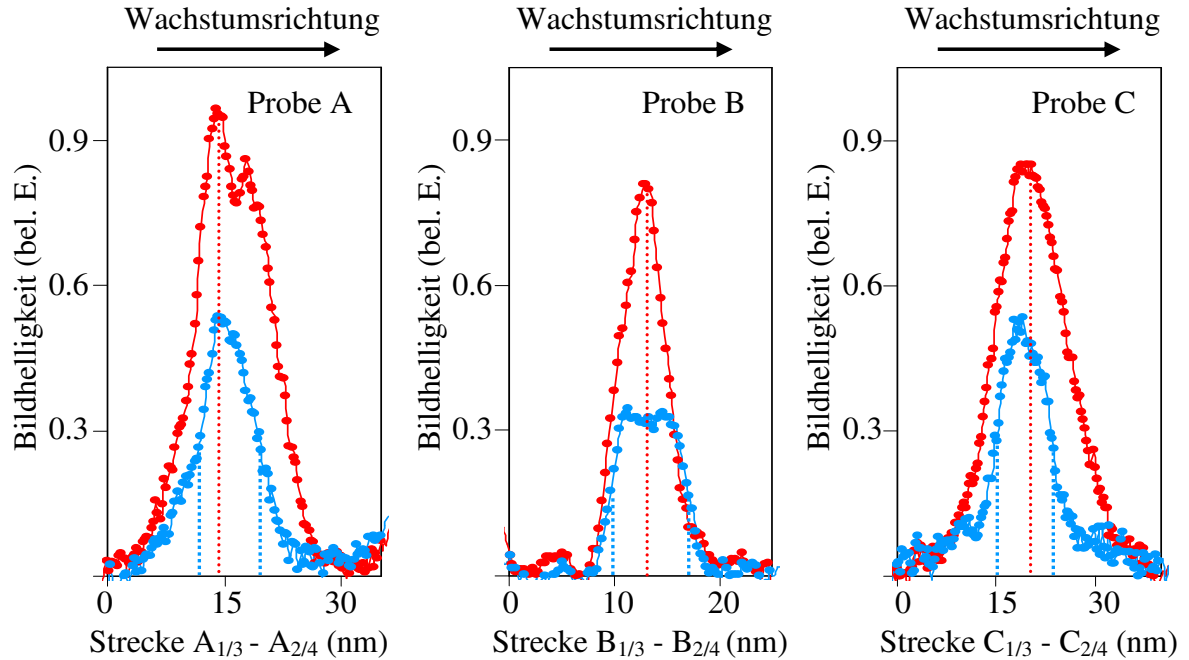


Abb. 4.4 Helligkeitsprofile typischer DWell-Z-Kontrastaufnahmen von QD-Strukturen (rot) und der entsprechenden QW-Strukturen (blau). Die roten Linien deuten die QD-Wachstumsposition an. Blau markiert sind die QW-Ausdehnungen (gemäß FWHM-Verfahren)

Zur genaueren Bestimmung der Position des QDs sind aus den Z- Kontrastbildern der drei Proben Helligkeitsprofile erstellt worden. Abb. 4.4 zeigt die Helligkeitsprofile von Probe A (links), Probe B (mittig) und Probe C (rechts). Die Orte der Helligkeitsprofile aus Abb. 4.4 sind in Abb. 4.3 eingezeichnet. Dargestellt sind jeweils Helligkeitsprofile mittig durch einen QD einer typischen DWell-Struktur und mittig durch benachbarte QW-Strukturen. Zusätzlich zu den Helligkeitsprofilen ist in Abb. 4.4 die Lage der QD-Struktur (rot gepunktete Linie) angedeutet und die Ausdehnung der QW-Struktur gemäß FWHM-Verfahren (blau gepunktete Linie) markiert. Ausgewertet zeigen die Helligkeitsprofile folgendes: Die QDs in Probe A bilden sich selbstorganisiert näher an der unteren Grenze der DWell-Struktur, wobei die QDs zu beiden Seiten (unter- als auch oberhalb) nicht in InGaAs, sondern teilweise direkt in GaAs eingewachsen sind. Das Intensitätsmaximum des Helligkeitsprofils befindet sich etwa 1 - 2 nm unterhalb des DWell-Symmetriezentrums. In Probe B hingegen bilden sich die QDs geometrisch fast exakt im Symmetriezentrum der

DWell-Struktur aus. Die QDs, mit einer Höhe von durchschnittlich 6 nm, sind zudem komplett in die InGaAs-Matrix des QWs eingebettet. Die QDs in Probe C sind gegenüber dem Symmetriezentrum der DWell-Struktur 1 - 2 nm in Wachstumsrichtung verschoben. In Probe C wurde, wie bei Probe A, festgestellt, dass die Ausdehnung der QDs wieder bis in das Barrierenmaterial GaAs reichte (diesmal vor allem oberhalb) und die QDs somit nicht vollständig in die InGaAs-Matrix eingebettet sind. Die nominell symmetrische Einbettung der QDs in den QW ($x=5$ für Probe C) verschiebt die Wachstumsposition des QDs weiter in Wachstumsrichtung über die Mitte des DWells hinaus [Kü04, Kü05].

Bemerkenswert ist, dass bei allen drei untersuchten Proben das In-Maximum verglichen mit den nominellen Wachstumsdaten in Wachstumsrichtung verschoben ist. Kegel et al. konnten hierzu an InAs/GaAs-QD-Strukturen ohne Deckschicht zeigen, dass sich die Indium-Konzentration innerhalb eines QDs von unten nach oben stetig erhöht [Ke00]. Da die QD-Position durch das Indium-Maximum bestimmt wird, ist hierdurch ebenfalls eine Verschiebung eingewachsener QDs verständlich.

Die Morphologie der QDs im DWell wird durch die tatsächlich stark unterschiedliche Wachstumsposition stark beeinflusst. So zeigen die QDs in Probe A und C eine andere Form verglichen mit den komplett in InGaAs eingeschlossenen QDs von Probe B. Vergleichbare morphologische Auswirkungen beschrieben bereits Kim et al. an ähnlichen InAs-DWell-Strukturen [Ki03]. Die unterschiedliche Form der QDs wurde auch hier auf die ungleichen Wachstumsbedingungen der QD-Strukturen in der einbettenden InGaAs- bzw. in der einbettenden GaAs-Matrix zurückgeführt.

4.3 Photolumineszenz und Laser-Eigenschaften der „Dot in a Well“-Proben

In diesem Abschnitt werden die optischen Eigenschaften der DWell-Proben aufgezeigt, um die gefundenen strukturellen Ergebnisse den optischen Eigenschaften der DWell-Strukturen gegenüberstellen zu können. Die PL-Spektren (Charakterisierung von R. Krebs / Universität Würzburg) der drei Proben bei $T=300\text{K}$ zeigt Abb. 4.5 (links). Zu erkennen ist in den drei Spektren jeweils ein signifikanter PL-Peak der drei unterschiedlichen DWell-Strukturen.

Prinzipiell beeinflusst wird die absolute Lage der PL-Peaks u.a. durch eine unterschiedliche QD-Morphologie, eine unterschiedliche Einbettung und durch die daraus resultierende unterschiedliche Verspannung der drei DWell-Proben. Diese gegenläufigen Einflüsse auf die Lage der PL-Peaks lassen es hier allerdings kaum zu, eindeutige Schlüsse aus der absoluten Lage der PL-Peaks zu ziehen. Beispielsweise würde man theoretisch erwarten, dass die kleinsten QDs (im Vergleich der drei Proben die QDs in Probe B)

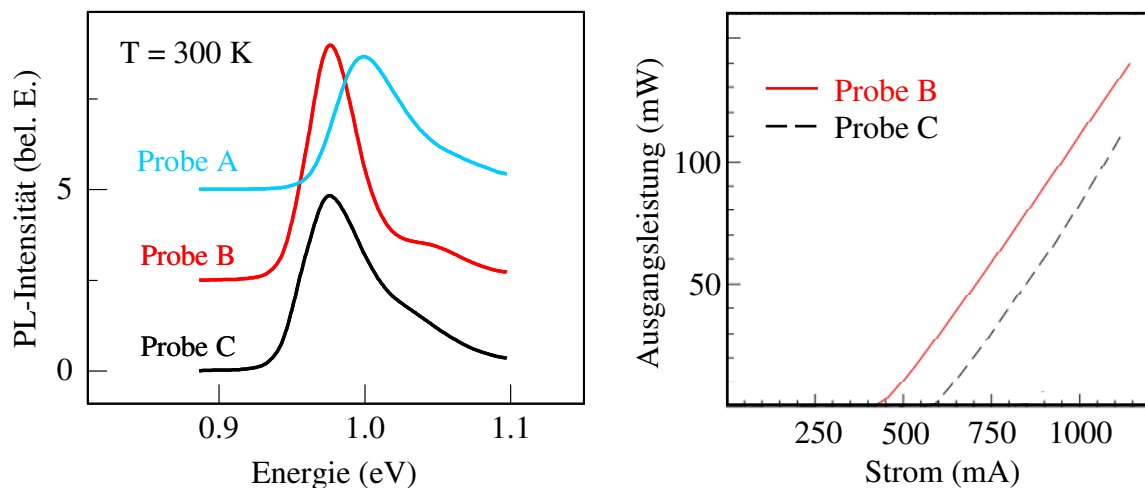


Abb. 4.5 Photolumineszenzspektren (links) von Probe A (blau), B (rot) und C (schwarz) bei 300 K und optische Ausgangsleistung (rechts) der auf Probe B und C basierenden Laser-Dioden [Kr03] als Funktion des Stroms

aufgrund der stärkeren Größenquantisierung den energetisch höchsten PL-Peak generieren (bei identischem In-Gehalt). Die abgebildeten PL-Messungen zeigen allerdings etwas anderes: Probe C zeigt eine fast identische Lage des PL-Peaks wie Probe B. Probe A weist

sogar einen hin zu größeren Energien verschobenen PL-Peak auf. Grund für diese Diskrepanz ist, dass, wie bereits erwähnt, neben der Größenquantisierung die anderen gegenläufigen Einflussfaktoren überwiegen. Beispielsweise wird die energetische Barriere eines QDs in Probe A und C durch das teilweise fehlende InGaAs stark erhöht (direkte GaAs-Barriere) und wirkt so dieser Verschiebung entgegen. Zusätzlich entstehen durch den direkten Kontakt mit GaAs wiederum andere Verspannungen auf einen Teil des QDs als im Falle eines homogen in InGaAs eingebetteten QDs, wie in Probe B. Daher ist die absolute Lage des PL-Peaks in diesem Fall von untergeordneter Bedeutung.

Von großem Interesse ist allerdings die Auswertung der Linienbreite der PL-Spektren, die ein Maß für die Homogenität der Quantenstrukturen ist. Es ergaben sich für die drei Proben PL-Linienbreiten (FWHM) von 44 meV (Probe A), 30 meV (Probe B) und 40 meV (Probe C). Probe B weist somit im Vergleich die geringste Linienbreite der drei Proben auf. Betrachtet man zudem die Stärke der gemessenen PL-Intensität, zeigt sich, dass zusätzlich hierzu Probe B das intensitätsreichste PL-Signal hat, was ebenfalls eine höhere Qualität der hergestellten DWell-Strukturen in Probe B andeutet.

Aus identischen DWell-Bereichen von Probe B und C wurden im Weiteren von Krebs et al. Laser-Dioden hergestellt [Kr03]. Eine der wichtigsten Charakteristika von Laser-Dioden ist die Abhängigkeit der optischen Ausgangsleistung vom elektrischen Anregungsstrom. Die entsprechenden Kurven der hergestellten Bauelemente mit dem für Laser-Dioden typischen Anstieg der optischen Ausgangsleistung zeigt Abb. 4.5 (rechts). Für effizient arbeitende Laser-Dioden sollte der Wert der Schwellstromdichte (Definition: Stromdichte am signifikanten Anstieg der optischen Ausgangsleistung) möglichst gering sein. Wie in Abb. 4.5 (rechts) zu erkennen ist, zeigt Probe B auch den geringeren Schwellstromwert. Die Auswertungen ergeben Schwellstromdichten für Probe B von 120 A/cm^2 und für Probe C von 180 A/cm^2 . Somit weist Probe B auch als Laser-Diode die besten Eigenschaften auf.

Vergleicht man die optischen mit den strukturellen Ergebnissen der drei Proben, zeigt sich folgendes: Die besten optischen Eigenschaften erzeugen die symmetrisch eingebetteten DWell-Strukturen in Probe B. Obwohl asymmetrisch gewachsen, bildeten sich hier letztendlich durch Prozesse der Selbstorganisation symmetrisch eingebettete „Dot in a Well“-Strukturen aus [Kü04, Kü05].

Insgesamt zeigen die vorgestellten RTEM-Untersuchungen dieses Kapitels, dass DWell-Bauelemente mit optimierten Eigenschaften möglich sind, wenn die Quantenstrukturen symmetrisch in den QW eingebaut und wohldefiniert von ihm umschlossen werden. Eine symmetrische Einbettung der QD-Strukturen kann durch ein asymmetrisches QW-Wachstum erreicht werden.

5 Vertikal korrelierte InGaAs/GaAs Quantum Dots

Wie bereits diskutiert, erfahren einzelne QDs aufgrund der veränderten elektrischen Eigenschaften durch Größenquantisierung große Beachtung u.a. als aktives Material in Laserdioden. Die charakteristische Ausbildung diskreter Energieniveaus aufgrund des dreidimensionalen räumlichen Einschlusses ist hierbei mit den diskreten Energieniveaus eines einzelnen Atoms vergleichbar. Bringt man zwei oder mehrere QDs dicht zusammen, so ist es möglich, dass sich die Ausdehnung der Elektronenwelle über mehrere QDs gleichzeitig erstreckt, man spricht in diesem Fall von Kopplung. Gekoppelte QDs können daher auch als künstliche Moleküle betrachtet werden und man bezeichnet sie auch als sog. Quantum Dot Molecules (QDMs) [St06]. Gekoppelte QDs sind für das Gebiet der Quanteninformationstechnik von großer Bedeutung und werden als Grundbausteine für Quantum Computer diskutiert [Be00, Mi00, Mi03, He07].

Die Herstellung gekoppelter Quantenstrukturen kann prinzipiell auch durch Selbstorganisation erfolgen. Durch räumlich korrelierte Wachstumspositionen von Quantenstrukturen, z.B. in mehreren Lagen übereinander, können so reproduzierbar gekoppelte Quantenstrukturen erzeugt werden. Ein praktikabler Ansatz hierzu ist das in Kapitel 3.3.1 beschriebene „Vertical Stacking“, bei dem durch die Fortpflanzung der Verspannung Wachstumspositionen über anderen Quantenstrukturen begünstigt werden können. Obwohl das Vertical Stacking prinzipiell verstanden ist, bleibt es nach wie vor eine Herausforderung an die Epitaxie, strukturell homogene QDs herzustellen. Kammerer et al. zeigten basierend auf TEM-Hellfeldaufnahmen, dass es zu einer Größenvariation von Vertically Stacked QDs kommt, wenn die Wafer-Rotation im Epitaxieschritt unterbleibt. Die Ausnutzung dieses Effekts ermöglichte zudem die Entstehung größenvariiertter QDs in unterschiedlichen QD-Lagen [Ka05]. Die Wachstumsdichte entstehender QDs in einer Lage kann beim Vertical Stacking durch die Wahl der Wachstumsrate beeinflusst werden, wie Chen et al. publizierten [Ch02].

Sollen elektronische Kopplungen zwischen den QDs möglich sein, ist die Dicke der Barrierschicht ein kritischer Parameter. Der Einfluss der Barrierschichtdicke auf die sich ergebenden PL-Spektren wurde von Ilahi et al. untersucht [Il03]. Im Falle besonders dünner Barrierschichtdicken (~ 3 nm) zeigte sich hier, dass die kristalline Qualität der Barrierschichten sich vermindert, was wiederum zu deutlich schlechteren PL-Eigenschaften (PL-Ausbeute, absolute Intensität) führt. Kim et al. untersuchten den Zusammenhang zwischen der Morphologieänderung von Vertically Stacked DWell-Strukturen und den entsprechenden PL-Spektren [Ki03].

Systematische TEM- oder RTEM-Studien von Vertically Stacked QD-Strukturen, deren Schwerpunkte sowohl auf den strukturellen als auch auf den chemischen Eigenschaften gekoppelter QDs liegen, sind in der Literatur allerdings relativ selten. Einen Einblick in die chemischen Auswirkungen von Vertical Stacking auf InGaAs-QDs lieferten die Untersuchungen von Zhang et al. u.a. mittels energiedispersiver Spektroskopie (EDS) im TEM [Zh01]. Die vorgestellten Ergebnisse ließen vermuten, dass sich in den oberen QD-Lagen größere durchschnittliche In-Konzentrationen eingestellt haben. Eindeutig belegen konnten Zhang et al. diesen Trend jedoch nicht, da nicht ausgeschlossen werden konnte, dass der ermittelte Anstieg der In-Konzentration in diesen Messungen durch Größeneffekte systematisch verfälscht wurde [Zh01].

In diesem Abschnitt sollen daher vertikal korrelierte Quantenpunkte mit den Methoden der Raster-Transmissionselektronen-Mikroskopie untersucht werden. Neben den Methoden zur Feststellung der strukturellen und morphologischen Eigenschaften sind insbesondere chemisch analytische Untersuchungen mittels der EELS-Methode in Bezug auf die chemische Gleichartigkeit der hergestellten Quantenstrukturen von Interesse. Gegenstand der Untersuchung ist die Frage, ob bzw. wie sich das Vertical Stacking auf die Morphologie und die chemische Komposition der hergestellten $\text{In}_{0,50}\text{Ga}_{0,50}\text{As}$ -QD-Strukturen auswirkt.

5.1 Probenaufbau

Die hergestellten QDs wurden in einer Feststoff-MBE-Anlage auf undotiertem (001)-GaAs-Substrat hergestellt. Zunächst erfolgte das Aufwachsen einer 300 nm dicken GaAs-Pufferschicht und eines (quasi unverspannten) AlGaAs/GaAs-Übergitters (Teststruktur für EELS-Messungen). Anschließend erfolgte das Aufwachsen der unteren QD-Barriere,

bestehend aus 60 nm GaAs. Die QDs in dieser Probe wurden durch Submonolagenabscheidung mit 5 Zyklen von 0.17 nm $\text{In}_{0.18}\text{Ga}_{0.82}\text{As}$ und 0.11 nm InAs erzeugt. Nominell entspricht dies einer 1.4 nm dicken $\text{In}_{0.50}\text{Ga}_{0.50}\text{As}$ -Schicht. Aufgrund des Verspannungsunterschieds in Bezug auf GaAs entstehen hierdurch selbstorganisierte QDs. Direkt über die erste QD-bildende Lage erfolgt das Aufwachsen der GaAs-Barriere. Um

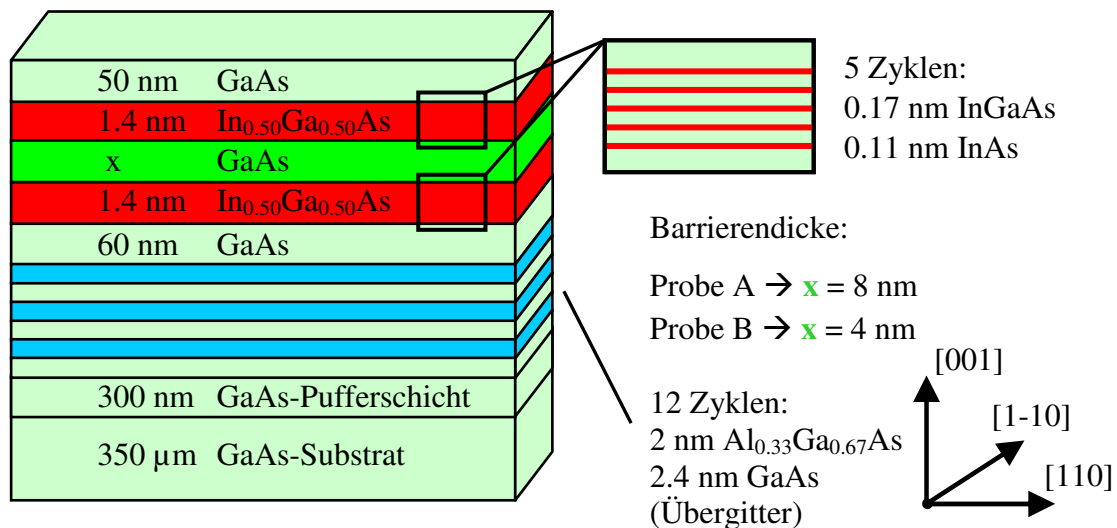


Abb. 5.1 Schematischer Probenaufbau zur Untersuchung vertikal korrelierter QDs

die Auswirkungen der Barriere auf die Ausbildung der zweiten QD-Lage analysieren zu können, wurden Proben mit unterschiedlichen Barrierenschichtdicken hergestellt. Die Dicke der Barriere in Probe A betrug 8 nm und in Probe B 4 nm. Die Herstellungsparameter der zweiten QD-Lage wurden jeweils nominell identisch zu denen der ersten QD-Lage gewählt. Abgeschlossen wurde das Wachstum mit einer 50 nm dicken Deckschicht, die gleichzeitig die obere Barriere für die QDs bildet. Als Referenz wurde zusätzlich Probe C hergestellt, welche lediglich eine QD-Lage beinhaltet. Probe C wurde ansonsten unter den gleichen Wachstumsbedingungen (u.a. identische Zyklen der Submonolagenabscheidung) wie Probe A und B hergestellt. Auch hier sind die QDs stets direkt in reines GaAs eingebettet.

5.2 Analyse der räumlichen Korrelation

Wie in Kapitel 3.3.1 beschrieben, kann das 3D-Inselwachstum der QDs eine Fortpflanzung der Verspannung durch eine Barriere bewirken. Dies wiederum kann die Wachstumseigenschaften (u.a. die Größenhomogenität) und die Wachstumsposition der

QDs in den oberen Lagen beeinflussen. Im Folgenden wird zunächst untersucht, wie sich die Reduktion der Barrierendicke von 8 nm auf 4 nm konkret auf die Wachstumsposition der hier untersuchten $\text{In}_{0.50}\text{Ga}_{0.50}\text{As}$ -QD-Strukturen auswirkt. Anhand mikroskopischer RTM-Aufnahmen (Z-Kontrast und Hellfeld) ist hierzu die laterale Wachstumsposition der QD-Strukturen in beiden Lagen bestimmt worden. Typische Hellfeldaufnahmen von Quantenpunkten der beiden Proben A (links) und B (rechts) sind exemplarisch in Abb. 5.2 gezeigt. In beiden Mikroskopbildern sind jeweils zwei Quantenpunktpaare zu erkennen. Der in Probe A auftretende Dunkel-hell-dunkel-Effekt einer QD-Struktur wird in Abschnitt 6.2 näher diskutiert. Das durch Hilfslinien markierte QD-Paar in Probe A (Abb. 5.2 links) zeigt hier einen deutlich erkennbaren lateralen Versatz der beiden QDs. Dieses Einzelergebnis deutet bereits an, dass in dieser Probe aufgrund der dickeren Barriere die Lage des oberen QDs tendenziell weniger stark durch den darunterliegenden QD beeinflusst wird.

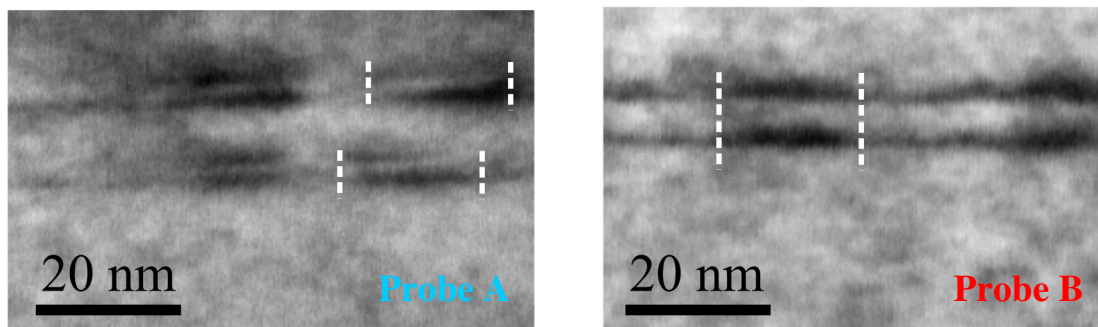


Abb. 5.2 Typische Hellfeldabbildungen von Probe A (links) und Probe B (rechts) mit eingezeichneten Hilfslinien zur Verdeutlichung der lateralen Wachstumsposition der QDs

Das exemplarisch ausgewählte Hellfeldbild von Probe B (Abb. 5.2 rechts) zeigt hingegen keinen lateralen Versatz zwischen oberem und unterem QD. Tendenziell deuten diese Einzelmessungen bereits an, dass durch die dünnere Barriere die Position des oberen QDs stärker von der Position des unteren QDs abhängt.

Um über die Proben statistisch relevante Aussagen treffen zu können, wurden anhand vieler solcher Mikroskopbilder mehr als 100 QDs in Bezug auf ihre relative Lage analysiert. Es wurde hierzu für jedes QD-Paar der laterale Versatz (auf Nanometerskala) zwischen dem QD aus der zweiten Lage und dem QD aus der ersten Lage bestimmt. Zur anschaulichen Darstellung der Auswirkung der Barrierenschichtdickenvariation auf die vertikale QD-Korrelation wurde der gemessene laterale Versatz in ein Histogramm mit

jeweils 2 nm breiten Klassen eingetragen (siehe Abb. 5.3). Die Klasse von -1 nm bis +1 nm enthält somit die Häufigkeit aller (im Rahmen der Fehlergenauigkeit) übereinander gewachsenen QDs der jeweiligen Probe. In Abb. 5.3 repräsentieren die blauen Balken die Häufigkeitsverteilung von Probe A (8 nm Barriere) und die roten Balken Probe B (4 nm Barriere).

Deutlich zu erkennen ist, dass Probe B im Vergleich zu Probe A eine deutlich größere vertikale QD-Korrelation besitzt. Der laterale Abstand der QDs in Probe A ist zwischen -5 nm und +5 nm näherungsweise zufällig verteilt. Beispielsweise sind nur 20 % der QDs direkt übereinander gewachsen (lateraler Versatz weniger ± 1 nm). Die Häufigkeitsverteilung von Probe B hingegen zeigt eindrucksvoll, dass fast 70 % der QDs direkt übereinander gewachsen sind. Diese Ergebnisse unterstreichen den bemerkens-

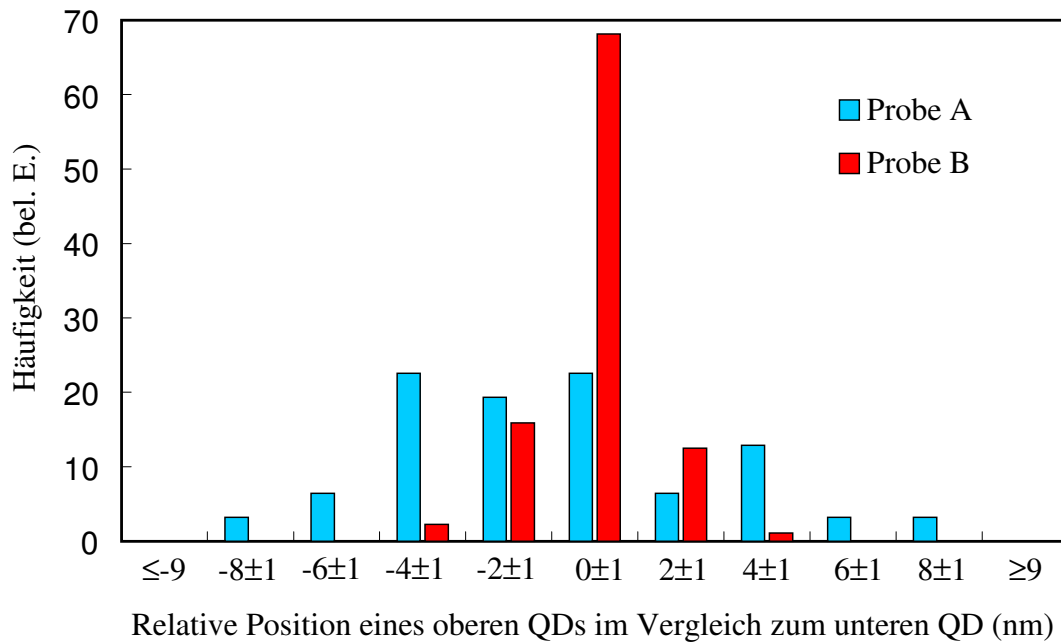


Abb. 5.3 Histogramm der relativen Position des oberen QDs relativ zur Position des unteren QDs, bei 8 nm (Probe A) und bei 4 nm (Probe B) Barrierendicke

werten Einfluss der Barrierenschichtdicke auf die laterale Wachstumsposition von $\text{In}_{0.50}\text{Ga}_{0.50}\text{As}/\text{GaAs}$ -QDs. Untersuchungen an reinen InAs-QDs in GaAs von Chen et. al führten zu ähnlichen Ergebnissen [Ch02]. Dieses Korrelationsverhalten konnte von Meixner und Schöll mittels Monte Carlo-Simulationen näherungsweise nachvollzogen werden [Me03]. Die stark unterschiedlich gemessenen Korrelationen der QDs in den Proben A und B stimmen sehr gut mit diesen Simulationen überein. Meixner und Schöll

ermittelten eine maximale Korrelations-Wahrscheinlichkeit (von 80 %) für Barrierendicken von 10-12 Monolagen (etwa 4 nm in GaAs) und eine deutlich geringe Korrelationswahrscheinlichkeit (ca. 50 %) für 25 Monolagen (etwa 8 nm in GaAs) dicke Barrierschichten. Ein Vergleich mit den vorgestellten experimentellen Ergebnissen an Probe A und B ergibt hier tendenziell eine gute Übereinstimmung.

5.3 Strukturelle und morphologische Eigenschaften

Die strukturellen und morphologischen Eigenschaften der QDs der hergestellten Proben A, B und C wurden anhand von Z-Kontrastaufnahmen in [1-10]-Querschnittsrichtung untersucht. Aufgrund der größeren mittleren Ordnungszahl von $\text{In}_{0.50}\text{Ga}_{0.50}\text{As}$ ($\bar{Z} = 36,5$) gegenüber dem einbettenden GaAs ($\bar{Z} = 32$) bewirken die InAs-haltigen Quantenstrukturen im Winkelbereich des Z-Kontrastdetektors eine größere Streuamplitude und somit eine höhere Intensität am Z-Kontrastdetektor. Dies führt dazu, dass die $\text{In}_{0.50}\text{Ga}_{0.50}\text{As}$ -haltigen Quantenstrukturen im Z-Kontrastbild hell im Vergleich zum dunkleren GaAs erscheinen müssen. In Abb. 5.4 sind typische Z-Kontrastaufnahmen von Probe A (links), Probe B (mittig) und Probe C (rechts) dargestellt. Die Mikroskopbilder

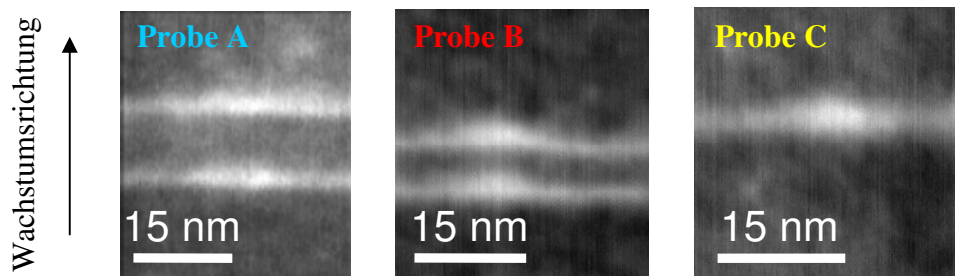


Abb. 5.4 Typische Z-Kontrast-Mikroskopaufnahmen von QDs in den Proben A, B und C

von Probe A (8 nm Barriere) und B (4 nm Barriere) zeigen jeweils ein vertikal korreliertes QD-Paar, das durch eine GaAs-Barriere getrennt ist. Das Mikroskopbild von Probe C (Referenzprobe ohne Barriere) zeigt einen einzelnen QD eingebettet in die GaAs-Matrix. Die Z-Kontrastaufnahmen der drei verschiedenen Proben zeigen, dass sich relativ flache und linsenförmige QDs gebildet haben.

Zur Ermittlung der absoluten QD-Höhe in Wachstumsrichtung wurde eine Vielzahl von Z-Kontrastbildern ausgewertet. Hierzu wurde das Programm Nanomess (siehe Anhang A) eingesetzt, das speziell für die rechnergestützte Höhenanalyse von Quantenstrukturen und dünnsten Schichten im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurde. Das Resultat der systematischen Auswertung der FWHM-QD-Höhen der Proben A, B und C in den unterschiedlichen Lagen ist in Abb. 5.5 aufgetragen. Für Probe A ergab die Auswertung eine QD-Höhe für beide Lagen 1 und 2 von $H = 4.2 \text{ nm} \pm 0.5 \text{ nm}$. Die QD-Höhen der Proben B und C wurden mit Nanomess zu $H = 4.3 \text{ nm} \pm 0.5 \text{ nm}$ bestimmt. Die laterale

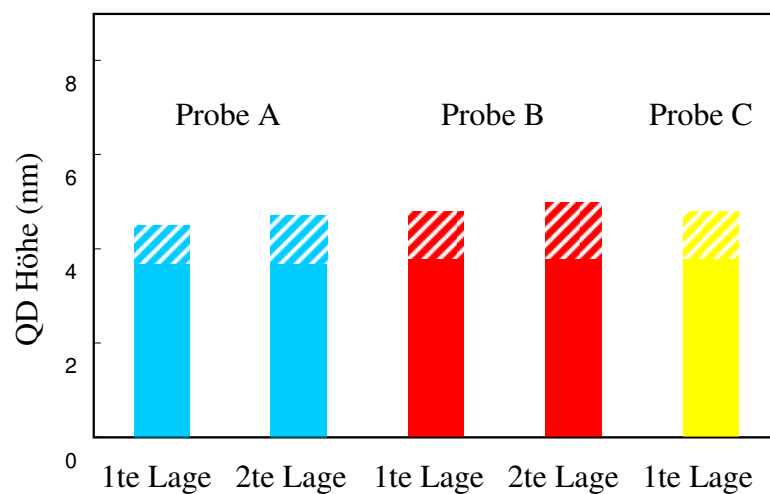


Abb. 5.5 Histogramm der QD-Höhen in den verschiedenen Proben und Lagen. Der gestrichelte Bereich repräsentiert die Standardabweichung

Ausdehnung der QDs in den Proben A, B und C betrug jeweils $W = 14.5 \text{ nm} \pm 2 \text{ nm}$. Unter Berücksichtigung der Messunsicherheit wurden somit identische QDs in den verschiedenen Proben und insbesondere auch in den verschiedenen Lagen vorgefunden [Sa06a, Sa06b, Sa06c]. Es zeigte sich prinzipiell ebenfalls auch kein Einfluss der Barriere bzw. der Barrierenvariation auf die Morphologie der selbstorganisierten QDs in den Proben A, B oder C.

Die Ergebnisse dieses Abschnitts zeigen, dass bei den hergestellten Strukturen die Barrierendicke keinen signifikanten Einfluss auf die Form und die Größe der selbstorganisierten QDs hat. Unter Berücksichtigung der beobachteten deutlichen Änderung der vertikalen QD-Korrelation bei variierender Barrierendicke ist dieses Ergebnis doch unerwartet. Offensichtlich führt die leicht unterschiedliche Verspannung jedoch zu keiner signifikanten Beeinflussung der QD-Größen der zweiten QD-Lage in den

Proben A oder B. Bemerkenswert ist, dass sogar die QDs in den unterschiedlichen Lagen innerhalb einer Probe (in A und B) quasi identisch in Form und Größe sind. Gewöhnlich ist für das Erreichen solch einer hohen Homogenität das Wachstum einer Vielzahl von QD-Lagen notwendig, damit sich ein Wachstumsgleichgewichtszustand einstellen kann. Tersoff et al. simulierten, dass durch den Einfluss der Verspannung beim Vertical Stacking sich in den höheren QD-Lagen homogene Wachstumsgrößen für die QDs unabhängig vom Startzustand der ersten Wachstumslagen einstellen. Die Wachstumsgröße (und -dichte) strebt stets einem Wachstumsgleichgewicht zu [Te96]. Gewöhnlich wird davon ausgegangen, dass sich in den ersten Schichten zunächst inhomogene Ansammlungen kleiner QDs ausbilden, die dann durch Vertical Stacking homogener und größer werden (siehe z.B. [St04]). Allerdings berichteten Solomon et al., dass es ebenso möglich sei, dass die erste QD-Lage größer als das Wachstumsgleichgewicht ist, wodurch sich in den oberen QD-Lagen ein Wachstumsgleichgewicht einstellen müsste, das letztendlich in kleineren QD-Strukturen mit homogener Wachstumsdichte resultiert [So97].

Ein möglicher Erklärungsansatz dafür, dass bei den untersuchten QDs der Proben A, B und C diese Homogenität so früh (quasi direkt) erreicht worden ist, wäre die Herstellung mittels Submonolagenabscheidung. Der genaue Grund allerdings, warum eventuell direkt im Gleichgewichtszustand das Wachstum begonnen wurde und warum die QDs in den unterschiedlichen Lagen keine Größenänderung zeigen, bleibt jedoch letztendlich unklar. Ein ähnliches Verhalten bzgl. der QD-Größen wurde von Ilahi et al. beobachtet. Auch hier konnte allerdings nicht begründet werden, wie es zu dem quasi sofortigen Erreichen des Gleichgewichtszustands gekommen ist [Il03].

Die bisher dargelegten strukturellen und morphologischen Ergebnisse deuten die Entstehung identischer QDs in den beiden Lagen an. Die chemische Zusammensetzung ist hierbei bisher völlig außer Acht gelassen worden. Rein theoretisch wäre es möglich, dass sich die chemische Komposition der QDs mit dem umgebenden Material, z.B. mit dem GaAs der Barriere durchmischt. Des Weiteren könnte dieser Prozess in den unterschiedlichen QD-Lagen unterschiedlich ausgeprägt sein, so dass die QDs in der zweiten Lage systematisch eine unterschiedliche chemische Komposition im Vergleich zur ersten Lage besitzen könnten. Aufschluss über die quantitative chemische Komposition der verschiedenen QD-Lagen kann die EELS-Methode des RTEMs liefern. Der Vergleich der chemischen Komposition der QDs in den verschiedenen Lagen wird daher im folgenden Abschnitt diskutiert.

5.4 Chemische EELS-Analyse

Die Herausforderung zur Bestimmung der chemischen Komposition der verschiedenen QD-Lagen liegt vor allem in zwei essentiellen Punkten: Gesucht ist zum einen die lokale chemische Zusammensetzung eines ca. 4.2 nm hohen Objekts. Wie bereits in Kapitel 2 erläutert, sollte die Bestimmung zwar theoretisch möglich sein, allerdings operiert man trotz der extrem guten räumlichen Auflösung der EELS-Methode bereits in einem Bereich, der rein technisch betrachtet stets gewisse Schwierigkeiten (Stabilität, geringe Signalintensitäten, ...) mit sich bringt. Zum anderen, und dies verkompliziert die Aufgabe prinzipiell, sind QDs (sehr) kleine Materialansammlungen und keine durchgehenden Schichten. Dies bedeutet, dass es präparativ praktisch nicht möglich ist, einen einzelnen QD ohne die ihn einbettende Kristall-Matrix zu untersuchen. In den hier untersuchten Proben bedeutet dies, dass der Elektronenstrahl des RTEMs den QDs selbst, aber auch stets die einbettende GaAs-Matrix in $[1-10]$ -Richtung durchqueren muss. Die inelastische Streuung in diesen Bereichen muss prinzipiell berücksichtigt werden, da stets ein Anteil der einbettenden Kristallmatrix die EEL-Spektren beeinflussen wird.

Einen schematischen Überblick des zugrunde liegenden Sachverhalts der Geometrien am Ort der EELS-Messung gibt Abb. 5.6. Eingezeichnet sind zwei vertikal korrelierte QDs (rot) mit Wetting Layer, die GaAs-Matrix (grün) und das Wechselwirkungsvolumen des durchquerenden Elektronenstrahls (gelb). Zur Auswertung

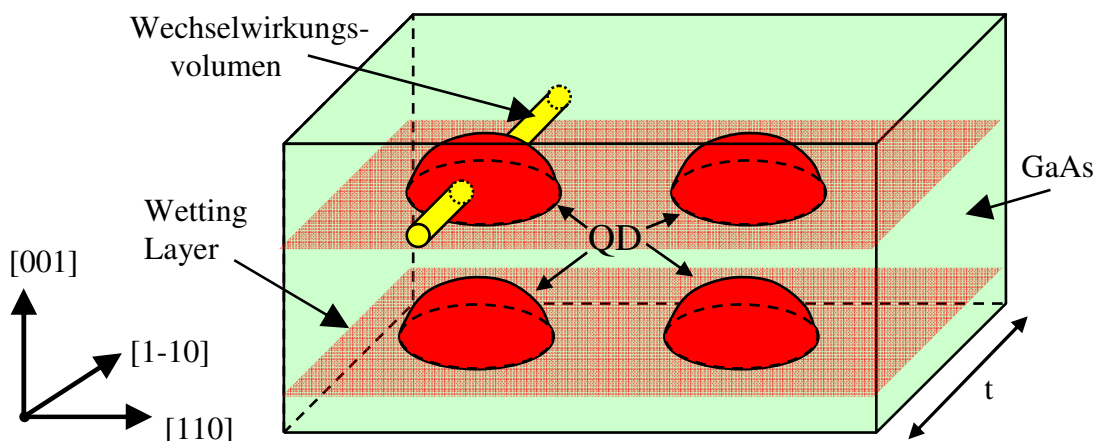


Abb. 5.6 Schematische Darstellung des Wechselwirkungsvolumens des Elektronenstrahls (gelb) bei einer EELS-Messung. Eingezeichnet sind die GaAs-Matrix (grün), zwei korrelierte Quantenpunktpaare (rot) und deren Wetting Layer

der chemischen Komposition der QDs eignen sich theoretisch sowohl die In- als auch die Ga-Kante, da die QDs nominell aus $\text{In}_{0.50}\text{Ga}_{0.50}\text{As}$ bestehen. Experimentell vorzuziehen ist in diesem Fall die ausschließliche Messung der Ga-Kante, da sich zum einen für Ga im messbaren Bereich (0 - 2000 eV) eine L-Kante befindet (Elektronen-Energieverlust 1115 eV), die prinzipiell in der Nanoanalytik wesentlich genauer (besseres Signal-Rausch-Verhältnis) ist, verglichen mit der messbaren M-Kante des Indiums (Elektronen-Energieverlust 443 eV) [Wi96]. Zum anderen ist der Anteil des QDs am Gesamtwechselwirkungsvolumen sehr klein (vgl. Abb. 5.6), wodurch der ohnehin nur 50 % betragende In-Anteil des Gruppe-III-Elements in den QDs auf das Gesamtvolumen (mit Matrix) gemittelt nur etwa 10 - 20 % beträgt. Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis einer In-EELS-Messung wäre in diesem Fall somit relativ schlecht und die Messung insgesamt ungenauer. Ein weiterer wesentlicher Vorteil der Messung der Ga-L-Kante ist, dass als Pufferschicht reines GaAs für Referenzmessungen zur Verfügung steht. Das Gruppe-III-Element Ga ist hier durch die Epitaxie genau bekannt (100 % GaAs) und kann somit zur Auswertung des absoluten chemischen Gehalts herangezogen werden.

Das Errechnen des absoluten In- bzw. Ga-Gehalts des QDs erfordert allerdings u.a. eine Modellierung der Form und somit eine Modellierung des Anteils des QD-Volumens am Gesamtwechselwirkungsvolumen, was zusätzliche systematische Fehlerquellen birgt. (Die quantitative Bestimmung des In-Gehalts der QD-Strukturen erfolgt im letzten Absatz dieses Unterkapitels.) Da in erster Linie der direkte Vergleich der beiden QDs in den verschiedenen Lagen von Interesse ist, wird im Folgenden ausschließlich der gemittelte Ga-Wert (Mittelung über das in Abb. 5.6 gelb eingezeichnete Wechselwirkungsvolumen) verglichen. Der Vergleich dieser gemittelten Ga-Konzentrationen kann ohne weitere Rechnungen erfolgen und ist somit praktisch am genauesten.

Für den direkten Vergleich der QDs ist allerdings die Kenntnis der Probendicke t notwendig, da hiervon das EELS-Wechselwirkungsvolumen und somit auch die Intensität des Ga-L-Kanten-Signals ebenfalls direkt abhängt. Abgeschätzt werden konnte die Probendicke durch die Messung des Plasmon-Peaks im low-loss EEL-Spektrum (das Verfahren ist in Abschnitt 2.2.3.2 erläutert). Basierend auf den Plasmon-Peak-Messungen sind die chemischen EELS-Messungen an den vertikal korrelierten QDs (in Probe A und B) jeweils an Probenstellen gleicher Dicke durchgeführt worden. Bestimmt wurde jeweils ein Wert für die Probendicke von $t = 45 \pm 10$ nm. Innerhalb des Messgebiets einer Probe (typische Größe: 63 nm * 63 nm) ist der Unterschied in der Probendicke durch die sehr homogene Probenpräparation sehr gering (Größenordnung 1 nm) und als konstant

anzusehen. Die selektive Festlegung auf Probengebiete einheitlicher Dicke erlaubt im Folgenden den direkten Vergleich der jeweils ermittelten Ga-Konzentrationen in den beiden Proben A und B. Aus diesen Vorüberlegungen heraus wurden die QDs in den verschiedenen Lagen der Proben A und B mittels EELS analysiert.

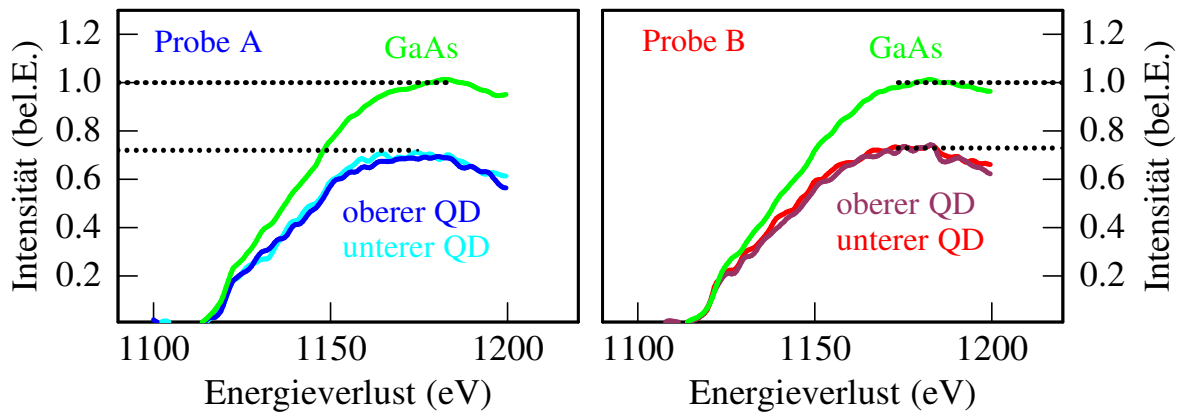


Abb. 5.7 EELS L-Kanten-Spektren korrelierter QDs und der GaAs-Referenz von Probe A (links) und Probe B (rechts)

Typische gemessene Ga-L-Kanten-EEL-Spektren der beiden Proben A (links) und B (rechts) sind in Abb. 5.7 dargestellt. Die Messdiagramme zeigen jeweils ein Ga-Referenz-Spektrum (grün; gemessen in GaAs) und jeweils ein Spektrum eines QDs der ersten Wachstumsstufe und ein Spektrum eines QDs der zweiten Wachstumsstufe. Auch ohne die integrative Auswertung der Spektren sind folgende wesentliche Punkte direkt erkennbar: Es zeigt sich, dass sowohl in Probe A als auch in Probe B die Spektren der beiden QD-Lagen einer Probe (erste und zweite Stufe) quasi deckungsgleich übereinander liegen. Die Intensitäten der EELS-Spektren der korrelierten QDs innerhalb einer Probe zeigen keinen messbaren Unterschied. Nimmt man an, dass in den QDs Ga durch den entsprechenden In-Anteil ersetzt sein muss, bedeuten diese Ergebnisse, dass chemisch identische QDs in den beiden Lage entstanden sind. Wertet man zudem die entsprechend normierten QD-Spektren beider Proben A und B aus, fällt auf, dass die Intensitäten sämtlicher QD-Spektren ca. 72 % der Ga-Referenzspektren aufweisen. Da, wie bereits erläutert, die Probendicke in beiden Messstellen identisch war und die räumlichen Ausdehnungen der QDs sich ebenfalls nicht unterscheiden, folgt somit, dass auch in beiden Proben (und in beiden QD-Lagen) gleichartige QDs selbstorganisiert entstanden sind [Sa06a, Sa06b, Sa06c].

Die chemischen Eigenschaften der Barriere werden im Folgenden anhand von EELS-Scans entlang eines vertikal korrelierten QD-Paares analysiert. In Abb. 5.8 sind für Probe A (links) und Probe B (rechts) die entsprechenden Messpunkte in den Z-Kontrastaufnahmen angedeutet. Die bereits durch Integration ausgewerteten Ga-Konzentrationen (aus den EELS-Messungen) der jeweiligen Messstellen sind für die beiden Proben stets darunter aufgetragen. In dieser Auftragung wurde als Referenz

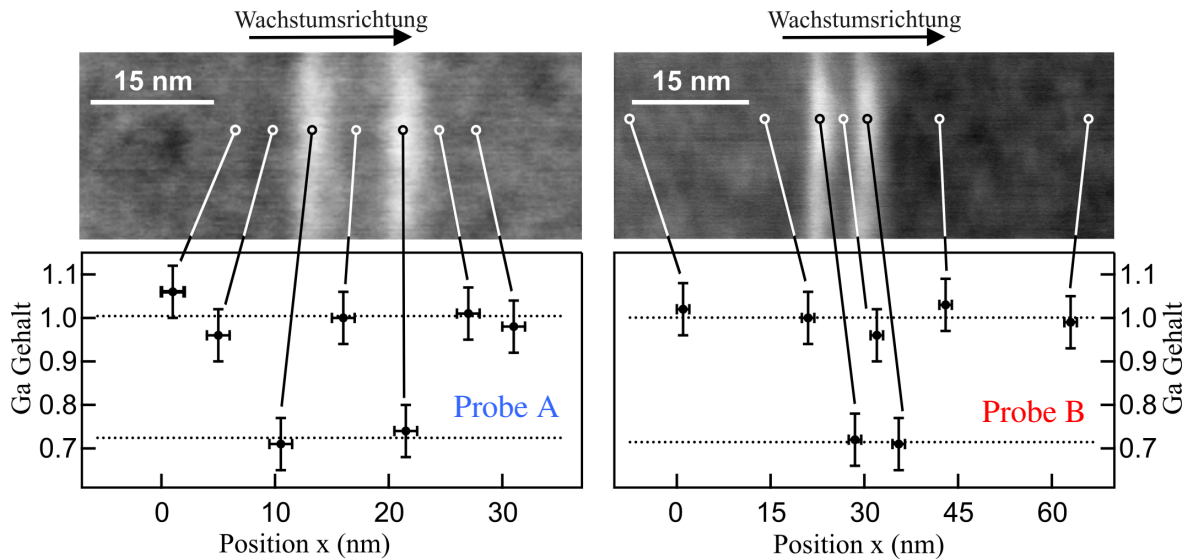


Abb. 5.8 Mittels EELS gemessene Ga-Konzentrationen entlang eines vertikal korrelierten QD-Paares für Probe A (links) und Probe B (rechts). Der Ort der Einzelpunkt-EELS-Messungen ist jeweils in den entsprechenden Z-Kontrastaufnahmen (oben) angedeutet

zur Normierung der Mittelwert der GaAs-Messstellen (Ga-Gehalt = 100 %) genutzt. Damit ergibt sich im Durchschnitt für eine GaAs-Messstelle eine Ga-Konzentration von 1.0 (100 %). Durch Störeinflüsse (wie Intensitätsrauschen) kommt es bei den ausgewerteten Einzelergebnissen zu einer leichten Abweichung vom theoretisch zu erwartenden Wert.

Die Messgenauigkeit (siehe Fehlerbalken in Abb. 5.8) beträgt in dieser Messung $\pm 6\%$. Die Anordnung der Messpunkte ist für beide Proben A und B quasi identisch gewählt worden: Zuerst wurden zwei Messwerte unterhalb der ersten QD-Lage aufgenommen, dann erfolgte die Messung zentral im unteren QD, anschließend wurde die Ga-Konzentration der Barriere aufgenommen, hierauf folgte die Messung zentral in dem vertikal korrelierten QD und abschließend wurden wiederum zwei Messungen oberhalb der zweiten QD-Lage im (nominell reinen) GaAs durchgeführt (siehe angedeutete Messpunkte in Abb. 5.8). Betrachtet man die in Abb. 5.8 dargestellten Ga-Konzentrationen der QDs, so

ergibt sich für die QDs der zwei Wachstumsstadien bei beiden Proben jeweils ein identischer Mittelwert von 72 %. Die Messpunkte in Abb. 5.8 mit nominell reinem GaAs ergaben stets Ga-Konzentrationen nahe 100 %. Von besonderem Interesse ist in beiden Proben der Messpunkt zwischen den beiden QDs, der aufgrund der hervorragenden räumlichen Auflösung (1 – 2 nm) des EELS-Systems weitere Informationen über die chemische Zusammensetzung in der Barriere liefern kann. Wie in Abb. 5.8 zu erkennen ist, konnte der Ga-Gehalt sowohl in der 8 nm dünnen Barriere von Probe A als auch in der 4 nm dünnen Barriere von Probe B gemessen werden. Selbst in diesem von $\text{In}_{0.50}\text{Ga}_{0.50}\text{As}$ umschlossenen Bereich zeigt sich jedoch keine signifikante Verminderung des Ga-Gehalts in den Barrieren beider Proben. Offensichtlich verursachte der variierte Abstand zwischen den QDs keine messbare In-Verschleppung in die Barriere [Sa06a].

Basierend auf dem bestimmten mittleren Ga-Gehalt der QDs von 72 % wird abschließend die absolute In-Konzentration innerhalb der QDs abgeschätzt. Der Berechnung zugrunde liegt ein einfaches Modell, indem angenommen wird, dass die Ausdehnung der QD-Strukturen in [1-10]-Richtung (siehe Abb. 5.6) der gemessenen lateralen Größe W (Abschnitt 5.3) entspricht. Die restliche umgebende Matrix besteht im Berechnungsmodell aus reinem GaAs. Unter Einbeziehung der gemessenen Probendicke t und der Berücksichtigung des Einflusses der InGaAs-Wetting Layer konnte die In-Konzentration in den QDs zu 48 % bestimmt werden. Dieser Wert stimmt sehr gut mit dem nominell angebotenen In-Gehalt von 50 % überein. Offensichtlich bestehen die hergestellten QDs quasi vollständig aus dem nominell zum Wachstum angebotenen $\text{In}_{0.50}\text{Ga}_{0.50}\text{As}$.

Resümierend kann durch den Vergleich der drei Proben festgehalten werden, dass die gezielte Herstellung gekoppelter QDs mit den Methoden der Selbstorganisation eine Barrierendicke von unter 5 nm sinnvoll erscheinen lässt, um eine hohe vertikale Korrelation zu gewährleisten, die für die reproduzierbare Herstellung gekoppelter QDs, bzw. von QDMs nötig ist. Die Erhöhung der vertikalen Korrelation der untersuchten $\text{In}_{0.50}\text{Ga}_{0.50}\text{As}/\text{GaAs}$ -QDs beeinflusste weder die Morphologie noch die chemische Zusammensetzung der QDs.

6 Morphologie unterschiedlich verspannter InGaAs/GaAs-Quantenstrukturen

Verspannungen sind die treibenden Kräfte bei der Entstehung selbstorganisierter Quantenstrukturen. Verschiedene Gitterkonstanten unterschiedlicher Kristalle können aufgrund unterschiedlicher Wachstumsmechanismen (siehe auch Abschnitt 3.2) zu unterschiedlichen Morphologien führen. Die Bildung quasi punktförmiger Strukturen (QDs) kann in einigen Materialsystemen (z.B. InGaAs / GaAs) durch den Stranski-Krastanow-Wachstumsmodus [St38] beschrieben werden. Hierbei können kohärente (versetzungsfreie) QDs entstehen. Viele Aspekte (z.B. Wachstumsdichte [Hs06, Ch07], QD-Größe [Wa00c, Le06] oder QD-Homogenität [He04, Le07]) sind bei der Entstehung solcher quasi punktförmiger Quantenstrukturen (QDs) durch eine Vielzahl von Veröffentlichungen intensiv erforscht. Andere Quantenstruktur-Morphologien standen bisher weniger stark im Fokus der Forschung und sind weniger intensiv untersucht worden.

Tersoff et al. prognostizierten erst 1993 theoretisch fundiert die Möglichkeit der Bildung von eindimensional verlängerten selbstorganisierten Quantenstrukturen (z.B. QDashes) in verspannten Materialsystemen [Te93]. Dieses Verhalten konnte anschließend von verschiedenen Forschungsgruppen in unterschiedlichen Materialsystemen experimentell verifiziert werden. So beobachteten Utzmeier et al. eine Morphologie-Transformation von punkt- zu linienförmigen Strukturen an nicht überwachsenen InSb-Quantenstrukturen auf InP-Substrat in Abhängigkeit der nominell angebotenen InSb-Schichtdicke [Ut96]. Brongersma et al. berichteten von der bevorzugten Entstehung eindimensional verlängerter QDash-artiger CoSi₂-Quantenstrukturen auf Si-(100)-Substrat ab einer bestimmten kritischen Inselgröße [Br98]. Im Materialsystem InGaAs / GaAs wurden von Tillmann et al. ein Morphologieübergang an überwachsenen Strukturen hin zu QDash-artigem Wachstum durch sukzessive Erhöhung der Wachstumstemperatur mittels TEM-Untersuchungen festgestellt [Ti95]. Für die Materialkomposition der quantenstrukturbildenden Schichten in der Probenreihe von Tillmann et al. wurde hierbei stets In_{0,6}Ga_{0,4}As (Verspannung zu GaAs: 4.3 %) gewählt. Geringverspannte InGaAs/GaAs-Strukturen (nomineller In-Gehalt der Quantenstrukturen 17 % und 25 %)

wurden von Ma et al. untersucht [Ma01a]. Rasterkraftuntersuchungen ergaben, dass eine höhere Wachstumstemperatur bei geringverspanntem InGaAs/GaAs-3D-Wachstum die Bildung von QDash-artigen Strukturen bevorzugt. Referenz-Einzelschicht-Quantenstrukturen mit den nominell gleichen Wachstumsparametern aber mit einer geringeren Wachstumstemperatur führten hier hingegen zur bevorzugten selbstorganisierten Bildung von QDs. Eine weitere Möglichkeit der selbstorganisierten Bildung QDash-artiger InGaAs-Strukturen auf GaAs bietet die Verwendung unterschiedlich orientierter Substrate. So wurden z.B. von Li et al. $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ -QDashes auf GaAs-(553)-Substrat hergestellt und mittels Rasterkraftmikroskopie charakterisiert [Li01].

Die häufig (auch in den oben aufgeführten Beispielen) zur Analytik verwendeten Rasterkraftmikroskope eignen sich prinzipiell ausschließlich zum Messen nichtüberwachener Quantenstrukturen. Allerdings sind in den meisten Fällen gerade überwachsene Strukturen in den verschiedenen Anwendungen von besonderem Interesse. Oft wird einfach von den Ergebnissen der nichtüberwachsenen Quantenstrukturen auf die Morphologie der überwachsenen Strukturen geschlossen. Untersuchungen u.a. von Joyce et al. belegen jedoch, dass das Überwachsen der Quantenstrukturen oft zu deutlichen Änderungen der Morphologie selbst führen kann [Jo01]. Vorteilhaft sind daher prinzipiell Untersuchungen mittels RTE, da das Durchdringen der Probe mit dem Elektronenstrahl direkten Zugang auf die Morphologie der eingewachsenen Quantenstrukturen ermöglicht.

Die Untersuchung der Morphologie der jeweiligen Strukturen stellt allerdings eine technische Herausforderung an die Probenpräparation dar. Draufsichtsaufnahmen sind häufig problematisch, da die Quantenstrukturen oft so dicht unter der Oberfläche liegen (≤ 100 nm), dass einerseits ein Abtragen der Deckschicht zu riskant ist, da die Quantenstrukturen mit beeinträchtigt werden könnte. Andererseits ist das Durchstrahlen der Proben ebenfalls nicht möglich, wenn ausschließlich substratseitig abgetragen wird, da die Gesamtdicke dann die gewünschte Probendicke (~ 45 nm) übersteigt. Draufsichtsaufnahmen auf InGaAs/GaAs-QDash Strukturen sind in der Literatur u.a. aus diesem Grund selten. Querschnittspräparationen hingegen sind, verglichen mit Draufsichtspräparationen, relativ einfach durchzuführen. Es finden sich in der Literatur dementsprechend eine Vielzahl an Querschnittsbildern von InGaAs-Quantenstrukturen wieder. Allerdings ist bei Querschnittsbildern teilweise nicht klar, ob es sich bei den untersuchten Strukturen um QDs oder QDashes handelt.

In diesem Kapitel soll daher anhand unterschiedlicher Proben ein Weg aufgezeigt werden, wie mittels Querschnittspräparation eine Morphologieunterscheidung (QD oder QDash) durchgeführt werden kann. Ausgewählt wurden drei Proben mit unterschiedlichen InGaAs/GaAs-Quantenstrukturen, deren In-Gehalt in einem weiten Bereich variiert wurde, so dass sowohl Proben mit QDash- als auch mit QD-Strukturen entstehen sollten. Nach einer expliziten Probenbeschreibung wird zunächst auf die Hellfeld-Charakteristika von QDs und QDashes eingegangen. Basierend auf diesen Charakteristika werden im Anschluss daran Hellfeld- und Z-Kontrastaufnahmen der drei unterschiedlich verspannten InGaAs/GaAs-Proben vorgestellt und im Hinblick auf die Quantenstruktur-Morphologie analysiert. Die morphologischen Ergebnisse der abbildenden RTM-Methoden (Hellfeld und Z-Kontrast) werden abschließend den Ergebnissen einer chemischen Analyse mittels EELS gegenübergestellt. Die hierzu vorgestellten Ergebnisse sollen die Möglichkeit demonstrieren, mittels der EELS-Methode die Morphologie von Quantenstrukturen aus Querschnittsbildern zu extrahieren.

6.1 InGaAs/GaAs-Proben mit unterschiedlichen Verspannungen

Der Einfluss der Verspannung auf die Quantenstrukturmorphologie wurde anhand von Proben mit variiertem In-Gehalt untersucht. Zur Untersuchung der Auswirkung auf die Quantenstrukturmorphologie der Verspannung wurden drei Proben hergestellt, deren Probenaufbau schematisch in Abb. 6.1 dargestellt ist. Identisch ist stets das GaAs-Substrat, gefolgt von der GaAs-Pufferschicht sowie der abschließenden GaAs-Deckschicht. Variiert wurde der nominelle In-Gehalt der quantenstrukturbildenden Schicht von 33 % (Probe A) über 45 % (Probe B) zu schließlich 60 % (Probe C). Aufgrund des unterschiedlichen In-

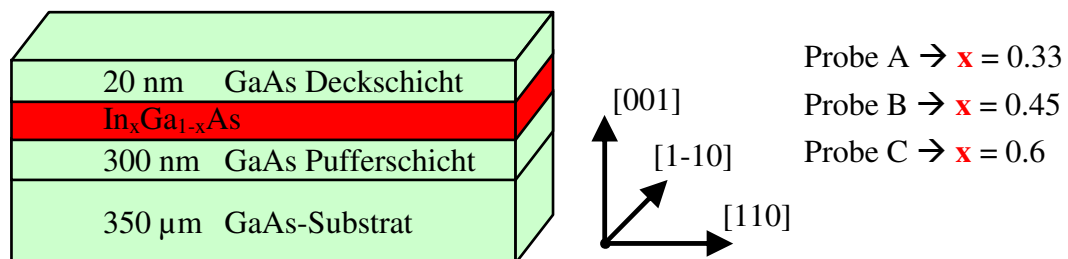


Abb. 6.1 Schematischer Probenaufbau dreier Proben mit unterschiedlichem In-Gehalt

Anteils ergeben sich nach Vegards Gesetz (bei 300 K) unterschiedliche Gitterkonstanten von theoretisch 0.5787 nm (Probe A), 0.5836 nm (Probe B) und 0.5896 nm (Probe C) [Ve21]. Die nominellen Verspannungen im Vergleich zu GaAs (Gitterkonstante 0.5653 nm) betragen somit 2.4 % (Probe A), 3.2 % (Probe B) und 4.3 % (Probe C). Das Wachstum der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Region erfolgte stets mittels Submonolagenabscheidung (Probe A: 30 Zyklen von 0.03 InAs und 0.12 nm $\text{In}_{0.16}\text{Ga}_{0.84}\text{As}$ bei 510°C; Probe B: 11 Zyklen von 0.07 nm InAs und 0.12 nm $\text{In}_{0.125}\text{Ga}_{0.875}\text{As}$ bei 510°C; Probe C: 7 Zyklen von 0.1 nm InAs und 0.1 nm $\text{In}_{0.20}\text{Ga}_{0.80}\text{As}$ bei 470°C). Die Wachstumstemperaturen der Puffer- und der Deckschichten von Probe A, B und C waren nominell identisch.

6.2 Charakteristische Hellfeldbilder in Querschnittsansicht: QD vs. QDash

Zur Untersuchung der verspannten InGaAs/GaAs-Quantenstrukturen ist es erforderlich, die Morphologie der selbstorganisierten Quantenstrukturen anhand von Querschnittsmikroskopaufnahmen zu bestimmen, da eine Draufsichtspräparation nicht möglich war. Zur Unterscheidung ob punktförmige oder längliche Strukturen entstanden sind, kann man sich einen für QDs charakteristischen Effekt zu nutze machen, der im Folgenden näher erläutert wird: Wächst man selbstorganisiert kohärente (also versetzungsfreie) Quantenstrukturen, so muss sich die Matrix des umgebenden Kristallgitters entsprechend der Form der eingebetteten Quantenstrukturen anpassen.

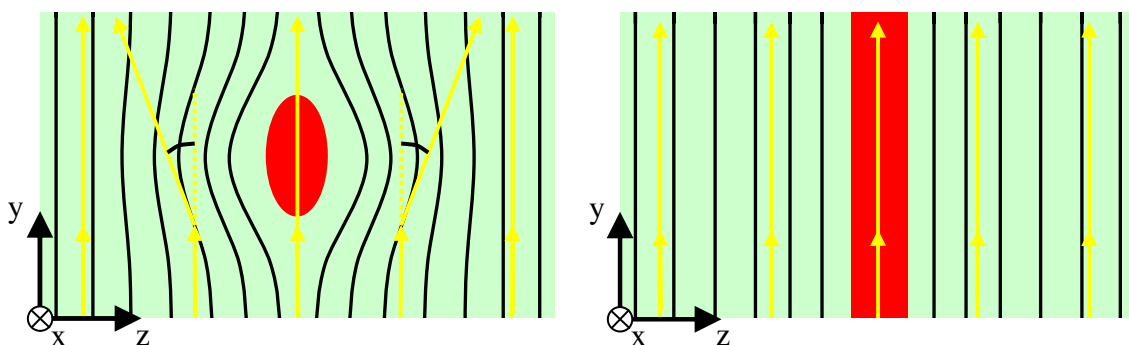


Abb. 6.2 Schematische Darstellung des Strahlengangs der Elektronen (gelb) durch eine QD-Struktur (links) und durch eine in y-Richtung ausgedehnte QDash-Struktur (rechts)

Wie in Abb. 6.2 (links) schematisch zweidimensional dargestellt, verursacht eine punktförmige kohärente Quantenstruktur (rot dargestellt) mit einer höheren Gitterkonstanten als die umgebende Matrix eine Verbiegung der einbettenden Kristallmatrix in allen Raumrichtungen. An den verbogenen Gitternetzebenen (schwarze Linien in Abb. 6.2 (links)) kann es zur Bragg-Reflexion des transmittierenden Elektronenstrahls (gelbe Pfeile in Abb. 6.2) kommen. Tritt dieser Effekt ein, so detektiert man deutlich weniger ungestreute Elektronen in Primärstrahlrichtung. Dieser Effekt kann im Falle einer in Elektronenstrahlrichtung orientierten länglichen Quantenstruktur nicht auftreten, da sich das Kristallgitter in z-Richtung nicht krümmt, wie in Abb. 6.2 (rechts) schematisch dargestellt. Qualitativ abbilden kann man diesen Effekt direkt mittels der Hellfeldmethode (intensitätsmodulierte Detektion der ungestreuten Primärelektronen). Der Beugungseffekt führt dazu, dass in der Hellfeldaufnahme eines QDs charakteristisch zwei dunkle Bereiche getrennt von einem helleren Bereich am Ort entstehen können.

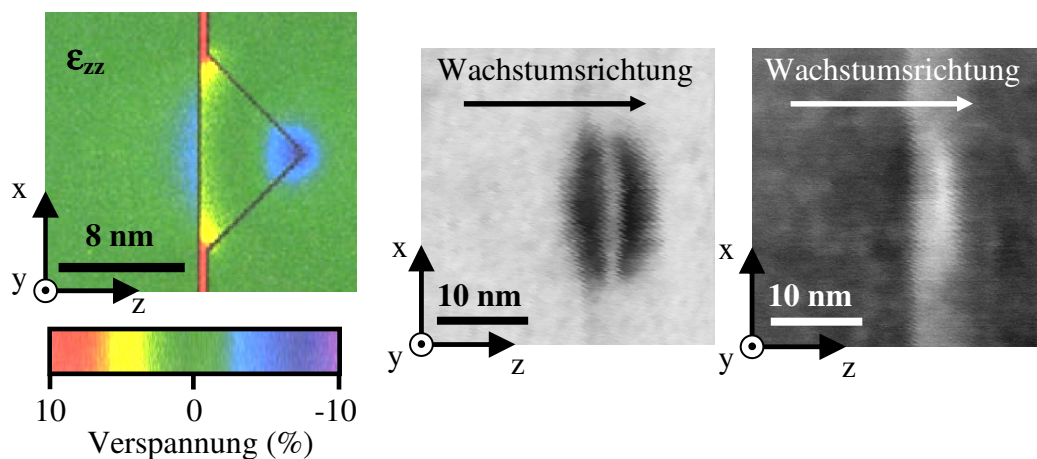


Abb. 6.3 Simulation der QD-Verspannungsverteilung mit entsprechender Farbskala (links) [Gr95] und typische Querschnittsaufnahmen eines QDs mittels der Hellfeld- (mittig) und der Z-Kontrastmethode (rechts)

Ein typisches Hellfeldbild eines InAs-QDs, das diesen Effekt aufweist, zeigt Abb. 6.3 (mittig). Das synchron aufgenommene materialsensitive Z-Kontrastbild ist zum Vergleich in Abb. 6.3 (rechts) aufgetragen. Gut zu erkennen ist, dass die Lage des QDs (hellster Bereich im Z-Kontrastbild) mit der Lage des hellen Streifens („line of no contrast“) im Hellfeldbild übereinstimmt. Zudem ist zu erkennen, dass das Z-Kontrastbild von diesen Beugungseffekten unbeeinflusst bleibt. Zeigt sich im Hellfeldbild dieser

charakteristische Dunkel-hell-dunkel-Effekt, so kann eindeutig auch aus Querschnittsbildern festgestellt werden, dass die untersuchte Quantenstruktur nicht strich- sondern punktförmig ist.

Das Auftreten des Dunkel-hell-dunkel-Effekts bei QD-Strukturen kann durch Verspannungssimulationen von Grundmann et al. an pyramidalen QDs verstanden werden. Die Verspannungen des Kristallgitters sind direkt über und unter einem QD am größten [Gr95]. Die simulierte Verspannungsverteilung (ϵ_{zz}) eines solchen QDs zeigt Abb. 6.3 (links). Die blauen bis violetten Verspannungsbereiche der Simulation entsprechen in guter Übereinstimmung den dunklen Bereichen in der Hellfeldabbildung und befinden sich exakt an der Spitze und an der Basisfläche der pyramidalen QDs. Sehr gut zu erkennen ist ebenfalls, dass dieser Verspannungseffekt sich aufgrund der Geometrien (Spitze, bzw. Unterseite der QD-Struktur) nicht symmetrisch verhält. Vergleicht man diese Simulationen mit den gemessenen Hellfeldbildern, so ist zu erkennen, dass Regionen großer Verspannungen bzw. Verbiegungen der Kristallmatrix entlang der Elektronenstrahlrichtung eine geringere Transmission ungestreuter Elektronen in y-Richtung bewirken.

Einschränkend ist anzumerken, dass das Auftreten dieses Effekts u.a. abhängig von der Lage des Dots in der präparierten Probe ist, da durch die endliche Dicke der präparierten Probe die Gitterrelaxation beeinflusst wird [Ki00]. Die Größe und die Verspannung der QDs hat ebenfalls größeren Einfluss, so dass der Dunkel-hell-dunkel-Effekt z.B. bei sehr kleinen QDs nur abgeschwächt auftritt. Die Ausrichtung der Probe relativ zum Elektronenstrahl beeinflusst das Auftreten des Dunkel-hell-dunkel-Effekts durch Änderung des Bragg-Winkels zudem besonders stark.

Festzuhalten ist, dass das Auftreten des Dunkel-hell-dunkel-Effekts im Hellfeld eine hinreichende, allerdings keine notwendige Bedingung für das Vorhandensein punktförmiger Quantenstrukturen ist. Längliche Quantenstrukturen hingegen zeigen, wenn deren Länge die präparierte Probendicke übersteigt, ein nahezu komplementäres Hellfeld und Z-Kontrastbild. Ein Dunkel-hell-dunkel-Effekt kann nicht auftreten, da die Netzebenen des Kristallgitters nicht in Richtung des Primärelektronenstrahls (y-Richtung) verbogen sind (siehe Abb. 6.2). Sofern keine anderen Einflüsse, wie z.B. Versetzungen vorliegen, wird die Intensität des Hellfeldbilds für längliche QDash-Strukturen vor allem durch die elastische Streuung der Elektronen an den Atomkernen beeinflusst.

6.3 Experimentelle Bestimmung der Morphologie aus Querschnitts-Hellfeldaufnahmen

Zur Bestimmung der Quantenstruktur-Morphologie der unterschiedlichen Proben A, B und C werden im Folgenden Hellfeld- und Z-Kontrastquerschnittsaufnahmen analysiert. Im Fokus der Untersuchungen dieses Abschnitts steht die Frage, ob der für QDs charakteristische Beugungseffekt in den einzelnen Proben auftritt oder nicht. Typische Aufnahmen einer nominell 2.4 % verspannten Quantenstruktur in Probe A zeigt Abb. 6.4. Die Quantenstruktur ist aufgrund der höheren mittleren Ordnungszahl von $\text{In}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ ($\bar{Z} \approx 35$) im Z-Kontrastbild als helles Objekt gegenüber dem einbettenden GaAs ($\bar{Z} = 32$)

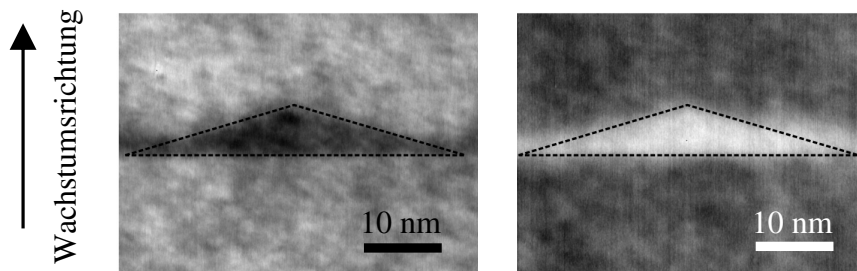


Abb. 6.4 Hellfeld- (links) und Z-Kontrastaufnahme (rechts) von Probe A

zu erkennen. Zu erkennen ist, dass die dargestellte Quantenstruktur im Hellfeldbild ein zum Z-Kontrastbild nahezu komplementäres Bild erzeugt, da im Hellfeldbild die durch den Ordnungszahlkontrast abgelenkten Elektronen fehlen. Hier ist die Quantenstruktur als dunkles Objekt zu erkennen. Messungen an unterschiedlichen Orten auf der Probe ergaben stets die gezeigten fast gänzlich komplementären Hellfeld- und Z-Kontrastbilder. Der für QDs charakteristische überlagernde Beugungseffekt an verbogenen Gitterebenen konnte nicht festgestellt werden. Die Frage nach der tatsächlichen Morphologie der entstandenen Quantenstrukturen (QD oder QDash) in der geringstverspannten Probe A (nominelle Verspannung 2.4 %) kann anhand der Querschnittsaufnahmen nicht beantwortet werden. Weiteren Aufschluss, auch über die Morphologie der entstanden Quantenstrukturen, kann hier eine Untersuchung mittels der chemischen Analysemethode EELS geben (siehe Abschnitt 6.4).

Die Quantenstrukturen in Probe B wurden mit einer nominellen Verspannung von 3.2 % hergestellt. Im Gegensatz zu den Beobachtungen an Probe A ergab die systematische Untersuchung an Probe B lokale Unterschiede bei den entstandenen Quantenstrukturen. In vielen Probengebieten konnten Hellfeld- und Z-Kontrastbilder gemessen werden, die nahezu identisch denen von Probe A sind. Typische Mikroskopaufnahmen eines solchen Bereichs aus Probe B mit Quantenstrukturen ähnlich denen in Probe A zeigt Abb. 6.5. Zu erkennen ist zum einen eine ähnliche

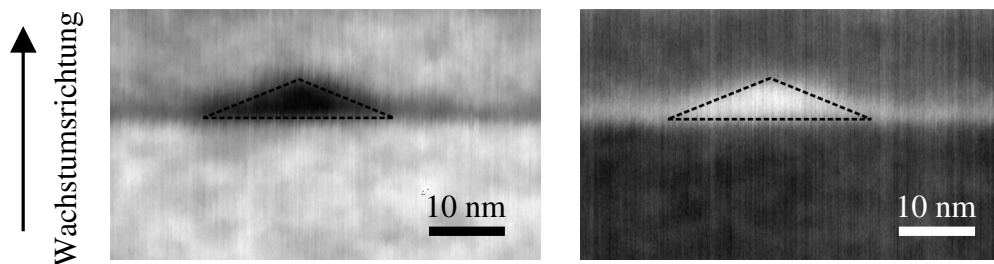


Abb. 6.5 Hellfeld- (links) und Z-Kontrastaufnahme (rechts) einer Quantenstruktur an ausgewähltem Ort in Probe B

Querschnittsform der Quantenstrukturen und zum anderen die quasi komplementären Aufnahmen von Hellfeld und Z-Kontrast (siehe zum Vergleich Abb. 6.4). In diesen Probenbereichen kann trotz der unterschiedlichen Verspannung kein wesentlicher Unterschied der beiden Proben festgestellt werden.

In anderen Bereichen von Probe B konnten allerdings völlig unterschiedliche Hellfelddbilder detektiert werden. Typische Hellfelddbilder eines anderen Probenbereichs zeigt Abb. 6.6. Deutlich ist hier zu erkennen, dass die Hellfeld- (links) und die Z-Kontrastaufnahme (rechts) nicht mehr komplementär sind. Vielmehr zeigt sich hier stark ausgeprägt der typische Beugungseffekt im Hellfelddbild, der das Vorhandensein von QDs kennzeichnet. Zudem zeigt sich, dass die Querschnitts-Strukturgröße der QDs dieses Probenbereichs deutlich kleiner verglichen mit den Quantenstrukturen des ersten gezeigten Probenbereichs (siehe Z-Kontrastaufnahme in Abb. 6.5) ist. Zur Verdeutlichung dessen sind die Querschnittskonturen der jeweiligen Quantenstrukturen mit gestrichelten Linien gekennzeichnet. Die zu dieser Probe vorgestellten Hellfeld- und Z-Kontrastaufnahmen lassen vermuten, dass innerhalb einer Probe mit nominell identischen Wachstumsbedingungen unterschiedliche Quantenstrukturen entstanden sind. Der ausgewählte nominelle Verspannungswert von 3.2 % könnte im Materialsystem $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$

/ GaAs in einem Übergangsbereich liegen, in dem es energetisch möglich ist, QD- und QDash-artige Quantenstrukturen auszubilden. Eine EELS-Analyse der Quantenstrukturen eröffnet hier die Möglichkeit das Wachstumsverhalten der beiden unterschiedlichen Gebiete besser zu erfassen (siehe Abschnitt 6.4).

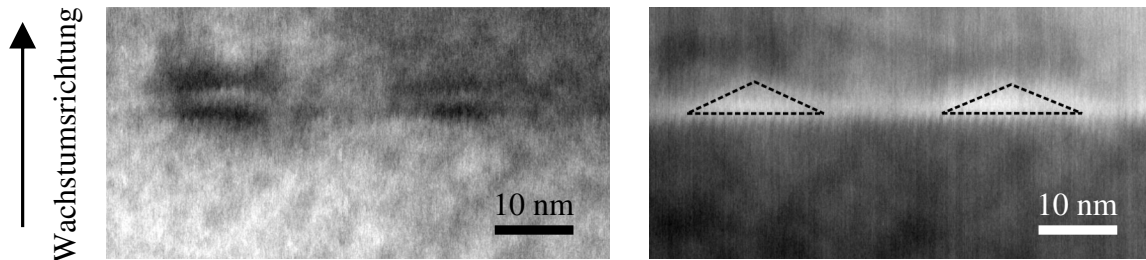


Abb. 6.6 Hellfeld- (links) und Z-Kontrastaufnahme (rechts) zweier Quantenstrukturen an einer zweiten Messstelle in Probe B

In der dritten Probe zur Untersuchung der Morphologie von verspannten InGaAs-Quantenstrukturen ist die nominelle Verspannung zwischen quantenstrukturbildendem Material und einbettender Matrix weiter erhöht worden. In Abb. 6.7 (links) ist hierzu ein typisches Hellfeldbild einer Quantenstruktur in Probe C (nominelle Verspannung 4.3 %) dargestellt. Die Quantenstruktur ist in der Hellfeldaufnahme wiederum als dunkler Bereich zu erkennen. Schwach zu erkennen ist hier der für QDs typische Dunkel-hell-dunkel-Effekt. Zur besseren Visualisierung dieses Effekts ist in Abb. 6.7 (rechts) ein Bildhelligkeitsdiagramm gezeigt. Dargestellt sind die Bildhelligkeiten der Hellfeld- und

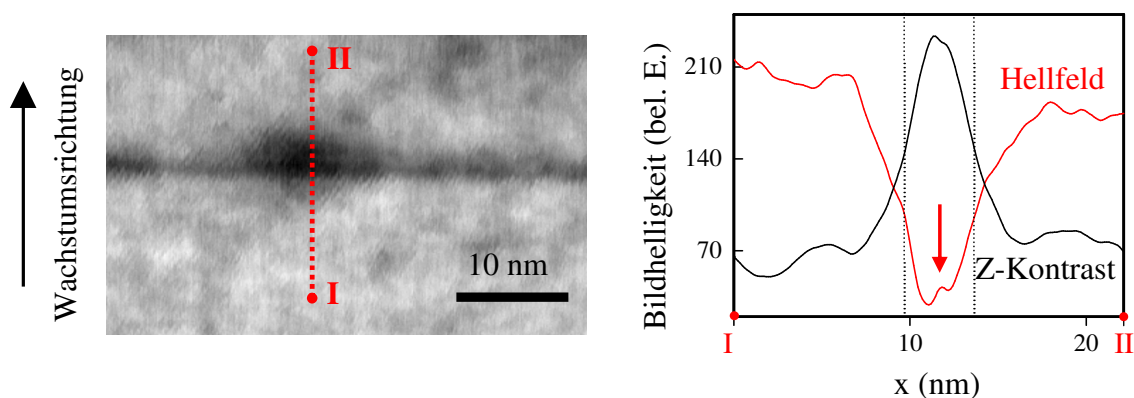


Abb. 6.7 Hellfeldaufnahme (links) einer Quantenstruktur von Probe C mit eingezeichnetem Ort des rechts abgebildeten Bildhelligkeitsverlaufs. Im Diagramm sind die Bildhelligkeiten der Hellfeld- (rot) und der Z-Kontrastaufnahme (schwarz) dargestellt. Der rote Pfeil markiert den morphologiebedingten charakteristischen Helligkeitsanstieg von QDs

der entsprechenden Z-Kontrastaufnahme entlang des in der Hellfeldaufnahme gezeigten Linienbereichs von A nach B. Das Helligkeitsprofil des Z-Kontrasts zeigt im Wesentlichen den Anstieg der mittleren Ordnungszahl im Bereich der Quantenstruktur. Das Helligkeitsprofil des Hellfelds zeigt in diesem Bereich erwartungsgemäß die geringste Bildhelligkeit. Wichtig ist zum einen der mit dem roten Pfeil markierte Bereich des Hellfeldhelligkeitsprofils, der den für QDs charakteristischen Anstieg der Bildhelligkeit kennzeichnet. Aufgrund dieses (wenn auch schwach ausgeprägten) Effekts könnte vermutet werden, dass in Probe C QD-Strukturen entstanden sind. Zum anderen kann in der Hellfeldaufnahme (Abb. 6.7) die Ausdehnung des Verspannungseffekts auch unterhalb der Quantenstruktur erkannt werden. Diese Ausdehnung des Verspannungseffekts unterhalb der eigentlichen Quantenstruktur entspricht ebenfalls den typischen Effekten bei QD-Wachstum. Allerdings ist die Aussagekraft dieses extrem schwach ausgeprägten Hell-dunkel-hell-Effekts allein relativ begrenzt. Auch hier ist der Einsatz der EELS-Analysemethode sinnvoll, da sich allein durch die Auswertung der Querschnittsbilder die Quantenstrukturmorphologie nicht bestimmen lässt.

Durch Auswertungen von experimentell aufgenommenen Querschnittsmikroskop-aufnahmen konnte bisher nicht bei allen untersuchten Proben eindeutig zugeordnet werden, welche Morphologie jeweils entstanden ist. Zur weiteren Untersuchung wird im Folgenden die chemische Analyse-Methode EELS eingesetzt. Die erzielten Ergebnisse werden im folgenden Abschnitt vorgestellt.

6.4 EELS-Analyse

In diesem Abschnitt wird die chemische Analysemethode EELS vor dem Hintergrund der Morphologiebestimmung der drei hergestellten Proben A, B und C eingesetzt. Analog zu den Überlegungen aus Abschnitt 5.4 wird in diesem Abschnitt ausgenutzt, dass das zylinderförmige Wechselwirkungsvolumen der EELS-Methode stets durch die gesamte Probendicke eingegrenzt wird. Bei den hier untersuchten InGaAs/GaAs-Quantenstrukturen lassen Messungen der Ga-Kante an Barriere (GaAs) und Quantenstruktur (InGaAs) unter Annahme bestimmter Voraussetzungen einen Rückschluss auf die Morphologie der Quantenstrukturen zu: Setzt man voraus, dass die Ga-Konzentration der Matrix (hier GaAs und somit 100% Gallium bzw. 0% Indium) und der InGaAs-Quantenstruktur (z.B. die beim Wachstum angebotene Materialkomposition) quantitativ bekannt ist, kann durch den Vergleich der theoretischen und experimentellen Ga-Konzentrationen der

unterschiedlichen Messstellen (Barriere, Quantenstruktur) indirekt auf die Morphologie der Quantenstrukturen (in Richtung des Elektronenstrahls) geschlossen werden. Eine weitere wesentliche Voraussetzung besteht in der Kenntnis der Probendicke, die aus low-loss EELS Spektren bestimmbar ist.

Die in Probe A ermittelten EELS-Spektren der Ga-L-Kante zeigt Abb. 6.8. Aufgetragen sind die Ga-L-Kanten-Spektren der Quantenstruktur (blau) und der reinen GaAs-Matrix (schwarz). Die Messung der GaAs-Matrix dient als Referenz für die quantitative Auswertung der EELS-Messungen. Um präparationsbedingte Dickenvariation

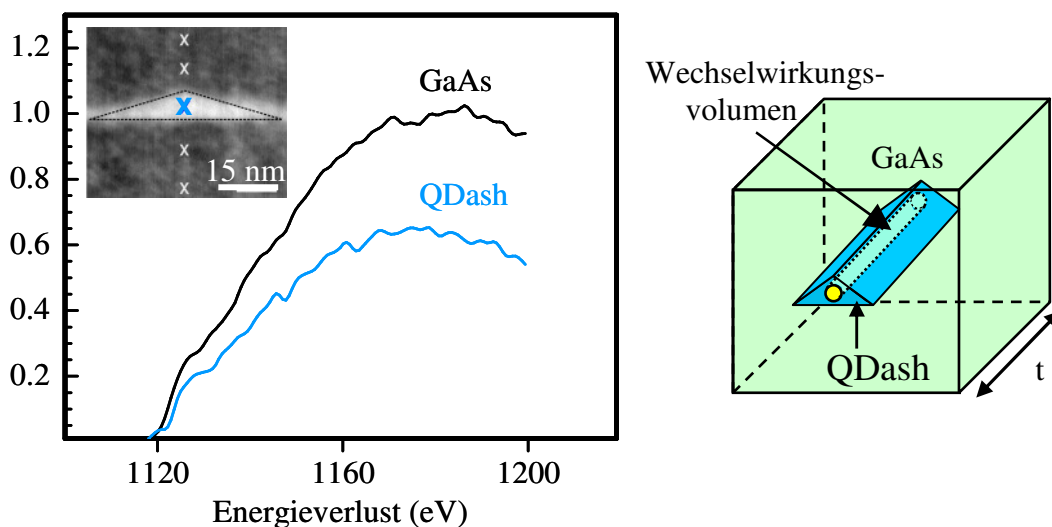


Abb. 6.8 Links: Gemessene EELS-Spektren (Ga-L-Kante) von einbettender GaAs-Matrix (Mittlung der vier Messstellen; schwarz) und QDash (blau) in Probe A. Das Inset zeigt eine Z-Kontrastaufnahme der entsprechenden Messstelle mit den angedeuteten Messpunkten. Recht: Schematische Darstellung des EELS-Wechselwirkungsvolumens

ausschließen zu können, wurde die GaAs-Referenzkurve (wie in der Z-Kontrastaufnahme des Insets angedeutet) aus vier Einzelmessungen erzeugt. Die Auswertung des Spektrums der Quantenstruktur ergibt eine mittlere Ga-Konzentration von 66.9 %. Da beim InGaAs-Wachstum keine weiteren Elemente beteiligt sind, kann gefolgert werden, dass die fehlenden 33.1 % aus Indium bestehen. Dieser gemessene mittlere In-Gehalt stimmt wiederum fast exakt mit dem nominell beim Wachstum angebotenen In-Gehalt von 33 % überein. Unter der Voraussetzung, dass die Quantenstrukturen sich direkt aus dem beim Wachstum angebotenen $\text{In}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ gebildet haben, kann an dieser Stelle festgehalten werden, dass es sich bei den hergestellten Quantenstrukturen in Probe A mit hoher

Wahrscheinlichkeit um QDashes handelt, deren eigentliche Länge die der Probendicke übersteigt (siehe schematische Darstellung in Abb. 6.8). Zu erkennen ist, dass sich das Wechselwirkungsvolumen der EELS-Messung stets innerhalb der länglichen Quantenstruktur befindet, wodurch bei $\text{In}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ -QDash-Strukturen der gemessene Wert der Ga-Komposition mit dem nominellen Wert übereinstimmen muss.

Analog zu dem oben beschriebenen Messungen sind im Folgenden die EELS-Ga-L-Kanten-Spektren in Probe B gemessen worden. Es wurden ebenso wie bei Probe A Referenz-Spektren der GaAs-Matrix detektiert und jeweils Spektren in den unterschiedlichen Gebieten (Abb. 6.5 und Abb. 6.6) von Probe B aufgenommen. Die ermittelten Spektren der beiden Messstellen sind in Abb. 6.9 dargestellt. Deutlich zu erkennen ist, dass das Ga-L-Kanten-Signal der bereits in Abschnitt 6.3 als QD

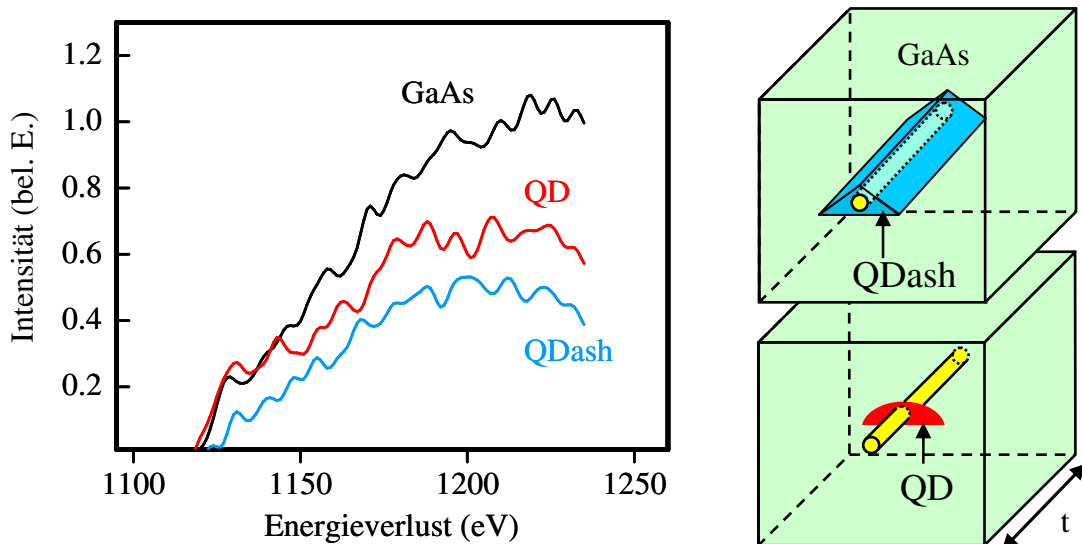


Abb. 6.9 Links: Gemessene EELS-Spektren (Ga-L-Kante) von einbettender GaAs-Matrix (schwarz), QDash (blau) und QD (rot) in Probe B. Rechts: Schematische Darstellung der EELS-Wechselwirkungsvolumina

identifizierten Quantenstrukturen (Hellfeldaufnahme in Abb. 6.6) signifikant stärker ist als das Signal der Quantenstrukturen der ersten Messstelle (Abb. 6.5) in Probe B. Ausgewertet ergeben sich charakteristische mittlere Ga-Konzentrationen von 75.1 % (QD) und 53.8 % (QDash). Der umgerechnete In-Gehalt der Messstelle beträgt somit 46.2 % und stimmt mit dem nominellen In-Anteil von 45 % der angebotenen Materialkomposition fast exakt überein. Unter der Voraussetzung, dass die Quantenstrukturen sich direkt aus dem beim Wachstum angebotenen $\text{In}_{0.45}\text{Ga}_{0.55}\text{As}$ gebildet haben, kann an dieser Stelle festgehalten

werden, dass es sich bei den Quantenstrukturen an der in Abb. 6.5 dargestellten Messstelle in Probe B mit hoher Wahrscheinlichkeit um QDashes handelt, deren eigentliche Länge die der Probendicke übersteigt (siehe schematischen Darstellung in Abb. 6.9). Im Falle der QDs ist, wie in Abb. 6.9 schematisch dargestellt, aufgrund der Einbettung in GaAs ein systematisch höherer Ga-Anteil (bzw. ein systematisch geringerer In-Anteil) zu messen. Die EELS-Messungen lassen den Schluss zu, dass in Probe B tatsächlich innerhalb der gleichen Probe morphologisch unterschiedliche Quantenstrukturen entstanden sind. Ein Wachstums-Verspannungswert von 3.2 % im Materialsystem $\text{In}_{0.45}\text{Ga}_{0.55}\text{As} / \text{GaAs}$ ermöglicht somit offensichtlich die Ausbildung sowohl von QDs als auch von QDashes.

Abschließend werden die analog zu Probe A und B durchgeführten EELS-Messungen an Probe C vorgestellt. Die Morphologie der in Probe C entstandenen Quantenstrukturen ließ bereits in Hellfeldbildern (siehe Abb. 6.7) punktförmige QD-Strukturen vermuten. Die entsprechenden EELS-Messungen an Probe C zeigt Abb. 6.10. Deutlich zu erkennen ist im Diagramm wiederum eine verringerte mittlere Ga-Konzentration der EELS-Messung an der Quantenstruktur (rot) im Vergleich zur Messung an reinem GaAs (schwarz). Wertet man die Messungen quantitativ aus, ergibt sich in der Quantenstruktur ein mittlerer Ga-Anteil von 73 %. Der mittlere In-Gehalt über das gesamte Wechselwirkungsvolumen beträgt somit 27 %. Dieser Wert unterscheidet sich signifikant

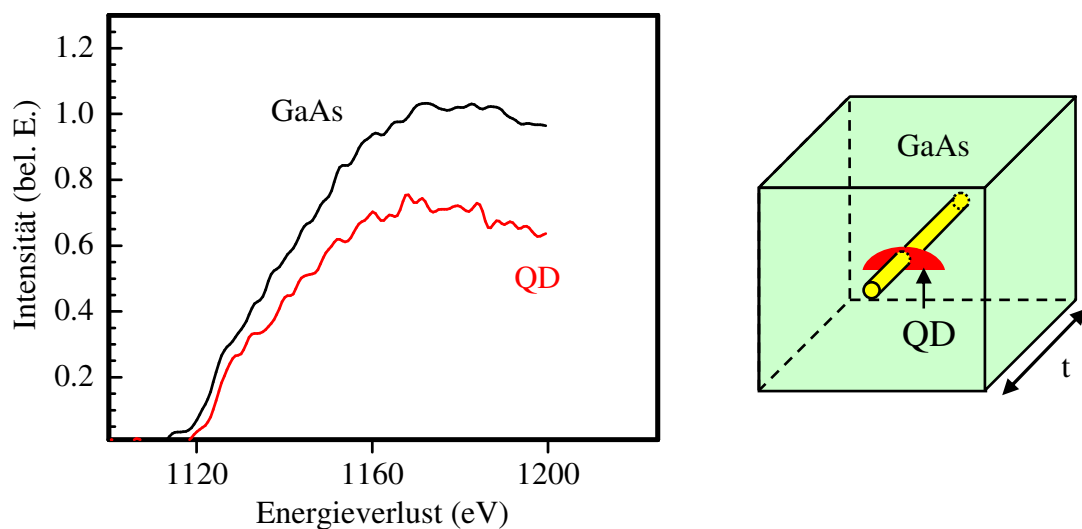


Abb. 6.10 Links: Gemessene EELS-Spektren (Ga-L-Kante) von einbettender GaAs-Matrix (schwarz) und QD (rot) in Probe C. Rechts: Schematische Darstellung des EELS-Wechselwirkungsvolumens

vom nominell angebotenen In-Anteil von 60 %. Dies kann wiederum dadurch erklärt werden, dass das Wechselwirkungsvolumen der EELS-Messung nicht exakt mit dem Volumen der untersuchten Quantenstruktur übereinstimmt (wie in der schematischen Darstellung in Abb. 6.10 dargestellt). In Übereinstimmung zu den Folgerungen in Abschnitt 6.3 (basierend auf der Untersuchung der Hellfeldaufnahmen), führt dieses Ergebnis zur Erkenntnis, dass die nominell mit 4.3 % verspannten InGaAs-Quantenstrukturen in Probe C eine (punktförmige) QD-Morphologie aufweisen.

6.5 Diskussion

Die Auswertung von Querschnittsaufnahmen mittels Hellfeld- und Z-Kontrast allein ließ nicht bei allen untersuchten Messstellen eine eindeutige Morphologiebestimmung der Quantenstrukturen zu. Durch die Anwendung der chemischen Analysemethode EELS konnte allerdings stets als zusätzliche Information die mittlere chemische Materialkomposition bestimmt werden. Diese Auswertungen lassen, zusammen mit den Hellfeld- und Z-Kontrastaufnahmen, einen besseren Rückschluss auf die Morphologie der jeweiligen Quantenstrukturen zu.

So ergaben sich für Probe B stets zwei charakteristische Ga-Konzentrationen: Erstens einen Ga-Gehalt von 55 % und zweitens einen Ga-Gehalt von 75 % (Abb. 6.5). Betrachtet man zudem die deutlich unterschiedlichen Hellfeldaufnahmen lässt sich festhalten, dass es sich bei den Quantenstrukturen der beiden Messgebiete in Probe B um morphologisch unterschiedliche Strukturen handelte. Es bildeten sich zum einen QD-Strukturen (siehe Hellfeldaufnahme in Abb. 6.6) und zum anderen sehr wahrscheinlich in Messrichtung ausgedehnte QDashes oder QDash-ähnliche Quantenstrukturen. Untersuchungen mittels Rasterkraftmikroskopie an nicht überwachsenen $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaAs}$ -Quantenstrukturen von Wang et al. bieten einen Erklärungsansatz für das duale Auftreten von QD- und QDash-Strukturen [Wa04]: Einerseits ist die Form der von Wang et al. beobachteten einzelnen Quantenstrukturen für sich betrachtet zunächst einmal punktförmig (also QD-förmig). Durch die nähere Betrachtung der Wachstumsanordnung der QDs konnte festgestellt werden, dass die QDs in sehr dichten Abständen (deutlich geringer als der Durchmesser eines QDs) fast exakt entlang der [1-10]-Kristallachse wachsen. Überlappen sich diese auch treffend als „QD-chains“ (QD-Ketten) bezeichneten Strukturen, bilden sich aus dem Zusammenwachsen mehrerer QDs dann QDash-artige Quantenstrukturen.

Konsistente Ergebnisse lieferten die EELS-Untersuchungen an Probe A und C, bei denen sich signifikante mittlere Materialkompositionen ergaben. In Probe A, bei der aufgrund der geringeren Verspannung ein QDash-artiges Wachstum theoretisch noch wahrscheinlicher als bei Probe B ist, ergaben die EELS-Messungen signifikant die nominell beim Wachstum angebotene Materialkomposition, was ein QDash-Wachstum andeutet. Die Messungen an den stärker verspannten Quantenstrukturen in Probe C hingegen ergaben stets einen deutlich höheren Ga-Gehalt, was für in GaAs eingebettete QD-Strukturen auch zu erwartenden ist. Die Eigenschaft, dass sich QD-Strukturen bevorzugt in Ketten in [1-10]-Richtung anzuordnen vermögen, bietet zudem einen Erklärungsansatz für den in Probe C nur sehr schwach ausgeprägten charakteristischen Beugungseffekt (für QD-Strukturen): Enger benachbarte weitere QD-Strukturen (in [1-10]-Richtung) könnten in diesem Fall die typische Gitterverbiegung einer QD-Struktur beeinflussen und so den charakteristischen Dunkel-hell-dunkel-Effekt abschwächen.

Die Messungen können insgesamt unter der Annahme verstanden werden, dass ein Wachstumsübergang von QDash-Strukturen zu QD-Strukturen beobachtet werden konnte. Dieses Verhalten kann auf die Erhöhung des angebotenen In-Gehalts des quantenstrukturbildenden Materials und damit auf die Zunahme der Verspannung von 2.4 % auf 4.3 % zurückgeführt werden. Des Weiteren konnte in Probe B bei einer nominellen Verspannung von 3.2 % zudem die gleichzeitige Entstehung unterschiedlicher Quantenstruktur-Morphologien beobachtet werden. Geringe Materialinhomogenitäten oder Verspannungsunterschiede in der Kristallmatrix können hier den Ausschlag über die Entstehung der jeweiligen Form gegeben haben. Ein ähnlicher Wachstumsübergang konnte von Balakrishnan et al. im Materialsystem InAs / $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ bei vergleichbaren Verspannungswerten zwischen 3 % und 4.5 % beobachtet werden [Ba04]: Mittels RKM konnten hier bei einem Verspannungswert von 3 % QDash-Strukturen und bei einem größeren Verspannungswertes von 4.5 % QD-Strukturen eindeutig bestimmt werden. Somit sollte auch bei den hier untersuchten Proben A, B und C die Verspannung - die treibende Kraft bei der Entstehung selbstorganisierter Quantenstrukturen - für den beobachteten Morphologieübergang von QDash- zu QD-förmigen Strukturen verantwortlich sein [Lö06].

7 Größenkontrolle von InAs/InGaAlAs-Quantum Dashes

Der große Vorteil der Selbstorganisation – das eigenständige Wachstum von hochwertigen Quantenstrukturen – kann den Nachteil mit sich bringen, dass eben durch die selbstständige Anordnung die direkten Einflussmöglichkeiten auf die Strukturen geringer (bzw. indirekter) sind. Um gezielt Quantenstrukturen für bestimmte Zwecke herstellen zu können, ist es notwendig, Parameter im Wachstum selbstorganisierter Strukturen zu finden, die es erlauben, bestimmte Eigenschaften der herzustellenden Strukturen präzise einzustellen. Da Eigenschaften wie Form oder Größe der selbstorganisierten Strukturen u.a. aus der Wechselwirkung zwischen elastischer Energie und Oberflächenenergie [Mo98, Te93] während der Wachstumsphase der Strukturen resultieren, sind die gesuchten Einfluss-Parameter in den Epitaxie-Wachstumsbedingungen zu suchen. Obwohl zahlreiche Veröffentlichungen existieren, die einige interessante und theoretisch fundierte Skalierungsabhängigkeiten aufzeigen, beschränkt die Selbstorganisation die Kontrolle der absoluten Strukturgröße weiterhin stark und es sind noch längst nicht für alle Quantenstrukturen die optimalen Wachstumsrezepte gefunden worden.

An selbstorganisierten QD-Strukturen sind viele wichtige Abhängigkeiten bereits erforscht. So berichten Ebiko et al. über eine Größenverteilungsfunktion in InAs/GaAs und beschreiben nichtlineare Abhängigkeiten zwischen der Wachstumsdichte und der durchschnittlichen Größe der sich bildenden QDs [Eb98]. In Bezug auf die absolute Größe der sich bildenden QDs konnten in diesen mittels Rasterkraftmikroskop (RKM) durchgeführten Messungen trotz der Variation der nominellen InAs-Ablagerung zwischen 1.6 und 2.2 Monolagen allerdings keine Abhängigkeiten festgestellt werden. Meixner et al. zeigten, dass Parameter wie Wachstumstemperatur und Wachstumsrate besonders starken Einfluss auf das Wachstum von Quantenstrukturen haben, die durch thermodynamisch oder kinetisch dominiertes Wachstumsverhalten geprägt sind [Me01]. Hierauf basierend demonstrierten Raab et al. eine Größenkontrolle von PbSe-QDs (gewachsen auf PbTe-Substrat) durch die Verwendung unterschiedlicher Wachstumstemperaturen [Ra02]. Joyce et al. erreichten durch die Variation der Wachstumsrate unterschiedliche Strukturgrößen an

QD-Strukturen im Materialsystem InAs/GaAs [Jo00]. In dieser Veröffentlichung konnte die Photolumineszenz-Wellenlänge der QDs durch Größenquantisierungseffekte über einen Bereich von etwa 100 nm eingestellt werden. Paranthoen et al. konnten durch Wachstumsunterbrechungen und Ausheizschritte die Photolumineszenz-Wellenlänge von InAs/InP-QDs um ca. 300 nm hin zu größeren Wellenlängen verschieben, so dass der Bereich von 1.55 μm erreicht werden konnte [Pa01].

Gerade die mit der Größenkontrolle von Quantenstrukturen verbundene Wellenlängenkontrolle im Infrarotbereich ist von übergeordnetem Interesse für wichtige Anwendungen im Bereich der Telekommunikation. Grund sind hierbei die für Datenübertragungen üblicherweise eingesetzten SiO_2 -Glasfasern, die bei 1.55 μm (drittes optisches Fenster) ihr absolutes Absorptionsminimum aufweisen. Ein weiteres wichtige „Telekommunikationsfenster“ für die Datenfernübertragung ist bei 1.3 μm definiert (zweites optisches Fenster), da hier relativ lange Übertragungswege ohne optische und elektrische Nachverstärkung möglich sind.* Aus Kostengründen überträgt man meist möglichst viele Signale parallel über eine Glasfaser. Im sogenannten „coarse wavelength division multiplexing“ (CWDM) ist hierzu ein Kanalaraster mit 18 Kanälen zwischen 1270 nm und 1610 nm standardisiert, die jeweils um 20 nm gegeneinander verschoben sind. Dieser besonders wichtige Wellenlängenbereich ist mit InAs/GaAs-QD-Strukturen allerdings nur schwer abzudecken. Die Verwendung von QDash-Strukturen führt bei Verwendung ähnlicher Materialsysteme allerdings zu den gewünschten langwelligen Emissionswellenlängen [Re05]. Diese Eigenschaft hat daher in den letzten Jahren die Forschung an QDash-Strukturen vorangetrieben. Utzmeier et al. stellten fest, dass sich ab einer Abscheidemenge von ca. 3.2 Monolagen im Materialsystem InSb / InP ein QDash-artiges Wachstum einstellen kann [Ut96]. Im Materialsystem InAs / InP wurde dieser Wert von Ponchet et al. zu ca. 2 Monolagen bestimmt [Po95]. Sehr periodisch in [1-10]-Richtung gewachsene InAs/InP-QDash-Strukturen wurden von Walther et al. vorgestellt [Wa00b]. Anhand von ca. 4 nm hohen und etwa 1 μm langen QDash-Strukturen wurden hier u.a. elektrische Eigenschaften wie die Ladungsträgerbeweglichkeit untersucht. Die prinzipiellen Laser-Eigenschaften von QDash-LD-Strukturen wurden ebenfalls bereits theoretisch [De04] und experimentell [Uk02] erforscht. Speziell hinsichtlich des Erreichens der Emissionswellenlänge von 1.55 μm wurden von Gendry et al. die

* Das erste optische „Telekommunikationsfenster“ für die optische Übertragung über SiO_2 -Glasfasern befindet sich bei 850 nm und wird für lokale Netze (z.B. Gigabit-Ethernet) genutzt.

strukturelle Höhendispersion und von Létoublon et al. die durchschnittliche chemische Komposition von InAs/InP-QDash-Strukturen untersucht [Ge04, Lé04].

Neben dem Abdecken der wichtigen optischen Telekommunikationsfenster können QDash-Strukturen zudem im Bereich der langwelligeren Sensorik eingesetzt werden. So konnten Balakrishnan et al. InAs-QDash-Strukturen mit Emissionswellenlängen im Bereich um 2 μm realisieren [Ba04].

Im Gegensatz zum Wachstumsverhalten von QDs, das relativ gut verstanden ist, befindet sich die theoretische Forschung zur Entstehung von QDashes noch in den Anfängen. So versuchten beispielsweise González et al. die Entstehung der InAs/InP-QDash-Morphologie auf den Austausch des Gruppe-V-Elements (As-P) zu erklären [Go04]. Diese Schlussfolgerungen erklären allerdings nicht die Ausbildung von InAs-QDash-Strukturen die z.B. in InP-gitterangepasstem InGaAlAs von [Sa05a, Sa05b] oder in InAlAs von [Zh03] beobachtet worden sind. Es zeichnet sich ab, dass speziell der günstige Gitterkonstantenunterschied des Materialsystems InAs/InP von $\Delta a = 3.1\%$ vielversprechende Möglichkeiten für das Wachstum von selbstorganisierten QDashes bietet [Re05]. Für die Epitaxie fehlen jedoch in diesem Materialsystem noch wichtige, praktisch einsetzbare Abhängigkeiten zwischen den Epitaxie-Wachstumsparametern und den gewünschten absoluten Größen der herzustellenden QDashes. So konnten Fuster et al. durch die Variation der Wachstumstemperatur bereits eine Größenkontrolle von QDash-Strukturen demonstrieren, allerdings erzeugte die Veränderung der Substrattemperatur in einer Probe Multi-Peak-PL-Spektren, hervorgerufen durch unterschiedlich große QDash-Strukturen in einer Probe [Fu04]. Im Folgenden wird daher, mit den Methoden der Raster-Transmissionsmikroskopie, eine pragmatische Möglichkeit untersucht, bei der durch Variation lediglich eines einzelnen Parameters – der nominell abgeschiedenen InAs-Menge – die Größe der QDashes direkt kontrolliert wird.

7.1 QDash-Proben

Für die Untersuchungen zur Größenkontrolle von im Infrarotbereich emittierenden QDashes wurden fünf verschiedene Proben auf S-dotiertem (001) InP-Substrat in einer EIKO Gasquellen-Molekularstrahl-Epitaxie-Anlage (GSMBE) hergestellt. Direkt auf das Substrat wurde epitaktisch bei den fünf Proben quaternäres InP-gitterangepasstes $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.23}\text{Al}_{0.24}\text{As}$ bei 500°C aufgewachsen. Anschließend erfolgte bei 470°C die

Ablagerung des optisch aktiven Materials (InAs), wobei die nominelle Dicke für die fünf Proben, wie in Abb. 7.1 angegeben, variiert worden ist. Aufgrund der Gitterfehlانpassung von 3.1 % zwischen InAs und quaternärem $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.23}\text{Al}_{0.24}\text{As}$ ist ein Dash-artiges selbstorganisiertes Wachstum der Quantenstrukturen zu erwarten. Im Folgenden erfolgte

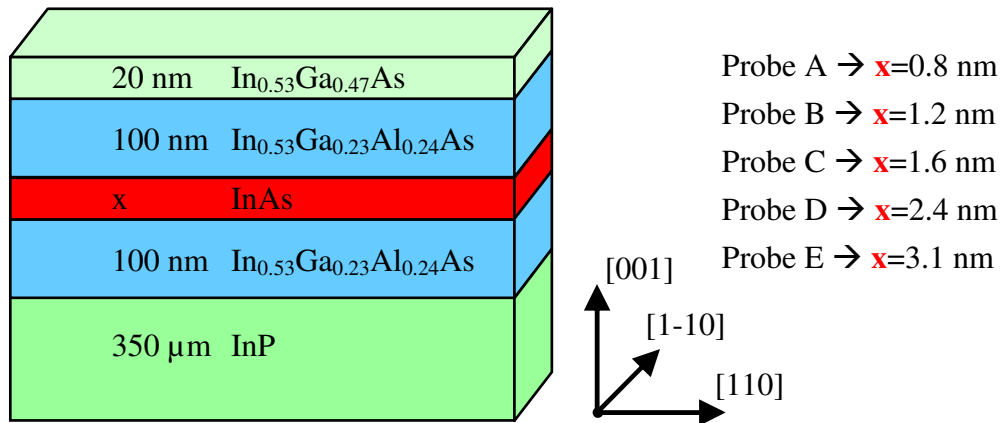


Abb. 7.1 Schematischer Aufbau der Proben zur Größenkontrolle von QDash-Strukturen

das epitaktische Aufwachsen der InP-gitterangepassten $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.23}\text{Al}_{0.24}\text{As}$ -Schicht zur symmetrischen Einbettung der Quantenstrukturen. Abgeschlossen wird der Schichtaufbau mit einer $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ -Schicht, um Oberflächenoxidationseffekte der aluminiumhaltigen $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.23}\text{Al}_{0.24}\text{As}$ -Schicht zu verhindern.

7.2 Morphologie

Zur Bestimmung der Morphologie der selbstorganisierten Quantenstrukturen wurden Querschnitts- und Draufsichtsbilder, jeweils mittels der Hellfeld- und der Z-Kontrast-Methode, aufgenommen. Aufgrund der größeren mittleren Ordnungszahl von InAs ($\bar{Z} = 41$) gegenüber dem umgebenden $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.23}\text{Al}_{0.24}\text{As}$ ($\bar{Z} = 34.6$) müssen die InAs-haltigen Quantenstrukturen hierbei im Z-Kontrastbild heller als das umgebende quaternäre $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.23}\text{Al}_{0.24}\text{As}$ erscheinen. Zur grundsätzlichen Beurteilung, ob sich überhaupt die erwünschten QDash-Strukturen ausgebildet haben, wurden die Proben zunächst in Wachstumsrichtung (also in der Draufsicht) in [001]-Richtung präpariert und untersucht.

Ein typisches Z-Kontrast-Draufsichtsbild zeigt Abb. 7.2. Im Mikroskopbild (links) ist zu erkennen, dass sich selbstorganisierte QDash-Strukturen (helle Streifen) gebildet haben, die vornehmlich parallel zur $[1-10]$ -Kristallrichtung gewachsen sind. Das in Abb. 7.2 rechts abgebildete Linienprofil der Bildhelligkeit zeigt zudem anhand der Lage der markierten Maxima eine relativ periodische Anordnung der QDash-Strukturen [Sa04]. Die Längen der QDash-Strukturen können grob zwischen 50 nm und einigen hundert Nanometern abgeschätzt werden.

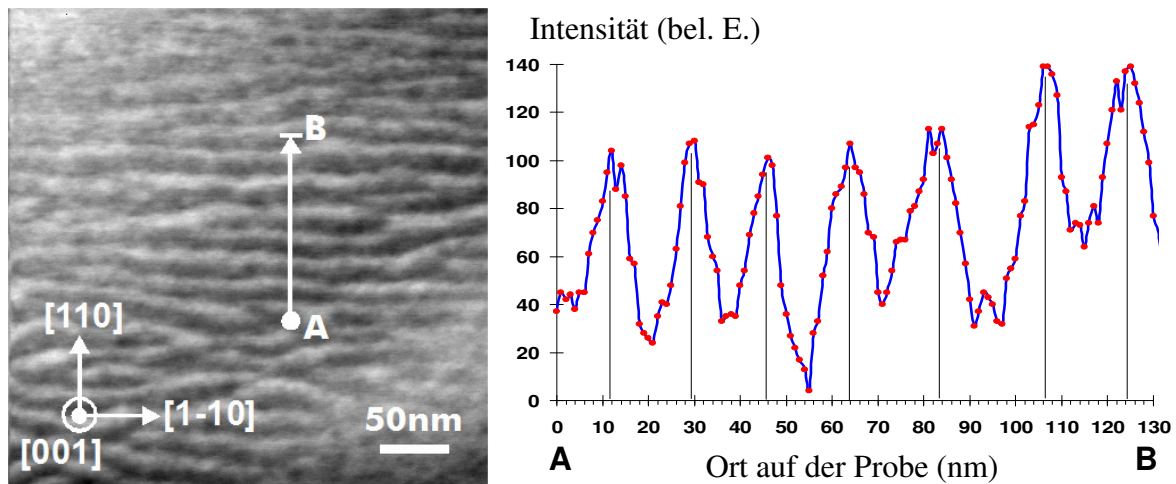


Abb. 7.2 Draufsichts-Z-Kontrastabbildung (links) mit eingezeichneten Kristallrichtungen und Ort des Helligkeit-Linienprofils (rechts) von A nach B

Von besonderem Interesse sind morphologische Querschnittsuntersuchungen in $[1-10]$ -Richtung, da bei Strukturen dieser Geometrien das optische Verhalten durch Größenquantisierungseffekte in der $(1-10)$ -Ebene, aufgrund der stärker eingeschränkten Bewegungsfreiheit der Ladungsträger, dominiert wird. Eine typische Querschnitts-Z-Kontrastaufnahme von Probe C in $[1-10]$ -Richtung zeigt Abb. 7.3. Zu erkennen ist, dass die hergestellten selbstorganisierten QDash-Strukturen einen dreieckigen Querschnitt besitzen. Analog hierzu wurde bei allen fünf hergestellten QDash-Proben eine ähnliche Morphologie vorgefunden. Die QDash-Strukturen besitzen somit die Form eines eindimensional verlängerten Dreiecks. Dieses Wachstumsverhalten unterscheidet diese, in eine quaternäre Matrix eingewachsenen Strukturen, von ähnlichen direkt auf InP aufgewachsenen QDash-Strukturen von Miska et al., die in Querschnittsrichtung kegelstumpfförmig abgeschnitten (sog. „truncated quantum dashes“) wachsen [Mi04]. Des Weiteren zeigt sich, dass die (unteren) Basisflächen der im Querschnitt dreieckigen

QDash-Strukturen quasi miteinander in Kontakt stehen. Hierdurch ergibt sich für die verschiedenen Proben eine extrem hohe Wachstumsdichte von $62 \mu\text{m}^{-1}$ (Probe A), $60 \mu\text{m}^{-1}$ (Probe B), $46 \mu\text{m}^{-1}$ (Probe C), $30 \mu\text{m}^{-1}$ (Probe D) und $26 \mu\text{m}^{-1}$ (Probe E). Die resultierende Oberflächenbedeckung entspricht somit bei allen Proben nahezu 100% [Sa05a].

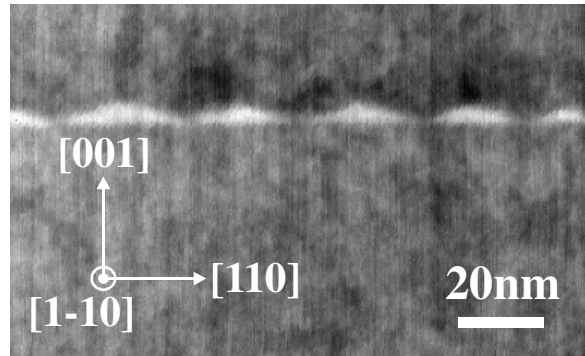


Abb. 7.3 Querschnitts-Z-Kontrastabbildung in $[1-10]$ -Richtung von Probe C

7.3 Größenkontrolle

Um Aussagen über die Größenkontrolle der hergestellten Strukturen treffen zu können, wurden anhand der Mikroskopabbildungen die Größe und die Größenverteilung der QDash-Strukturen analysiert. Hierzu wurden die Querschnittsbilder hunderter QDash-Strukturen einzeln exakt vermessen, womit anschließend eine statistisch relevante Auswertung der Höhe und der Basislänge des dreieckigen Querschnitts erfolgte. Die Auswertung ergab, dass die Größenverteilungen sowohl für die Höhe als auch für die Basislänge in erster Näherung gaußförmig verteilt sind.

In Abb. 7.4 ist hierzu exemplarisch ein normiertes Balkendiagramm der Höhenverteilung von Probe C aufgetragen. Durch die Auftragung in 0.6 nm breite Größenklassen ist die annähernd gaußförmige Höhenverteilung um einen Mittelwert von 4 nm herum zu erkennen. Basierend auf den Daten der statistischen Analyse wurde zudem für Höhe und Basislänge neben dem Mittelwert auch die Standardabweichung ermittelt, wodurch die tatsächlichen Verteilungsfunktionen der fünf QDash-Proben simuliert werden können. Für die in Abb. 7.4 dargestellte Höhenverteilung von Probe C ergibt sich exemplarisch eine Standardabweichung von 0.73 nm.

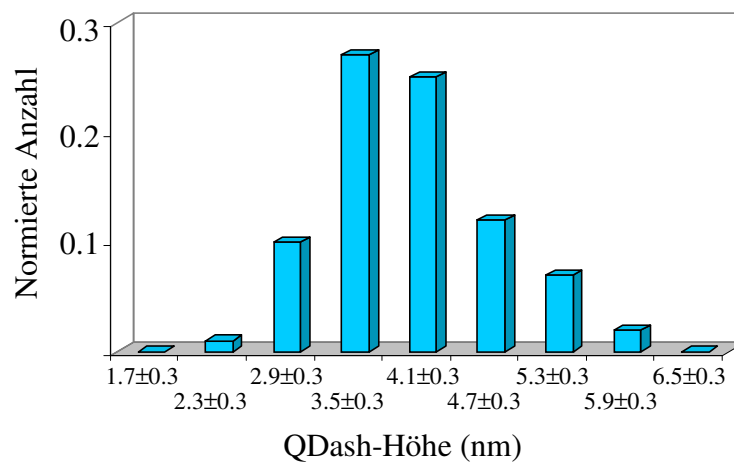


Abb. 7.4 Balkendiagramm der Höhenverteilung von Probe C in Größenklassen

Zur besseren Visualisierung sind in Abb. 7.5 exemplarisch die simulierten gaußschen Höhenverteilungen der Proben A, C und D dargestellt [Sa05c]. Zu erkennen ist, dass die Größenverteilung innerhalb der verschiedenen Proben relativ breit ist. Dies bedeutet beispielsweise, dass in Probe D auch einige (wenige) QDash-Strukturen mit der durchschnittlichen Größe der QDash-Strukturen von Probe C entstanden sind. Es zeigte sich, dass die dreieckige Querschnittsform von dieser Größeninhomogenität bei allen Proben A-E quasi unbeeinflusst blieb. Das Verhältnis Höhe zu Breite führt nahezu in allen Fällen stets zur gleichen Konstanten, resultierend in einem Winkel von 23° zwischen Basis- und Seitenfläche. Dieses Verhalten veranschaulichen die aufgenommenen Hellfeldbilder, die in Abb. 7.6 dargestellt sind. Die Zusammenstellung der fünf typischen QDash-Querschnitte der verschiedenen Proben A bis E ist zur Visualisierung nachträglich

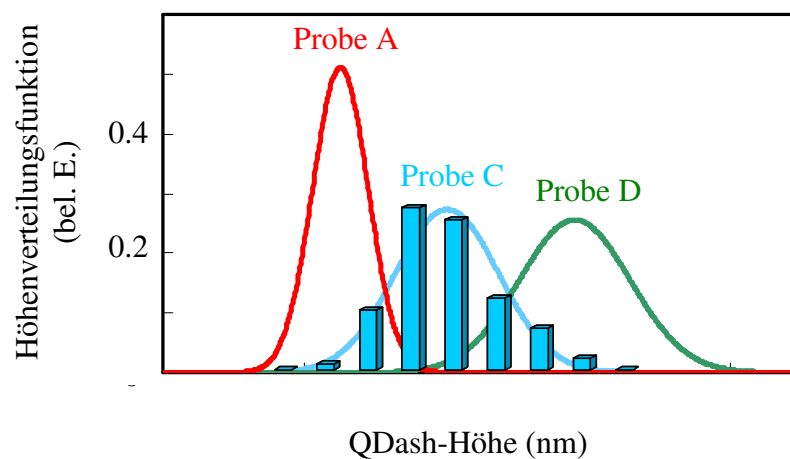


Abb. 7.5 Höhenverteilungsfunktion der QDash-Strukturen A, C und D

stets mit einem ähnlichen (Größe skaliert; alle Winkel identisch) schwarzen Dreieck umrandet worden [Sa05b]. Deutlich zu erkennen ist, dass die Querschnittsform der QDash-Strukturen erhalten bleibt und sich nicht mit der absoluten Größe der Strukturen verändert. Diese Grundvoraussetzung einer echten Quantenstruktur-Größenkontrolle wird somit von den hergestellten QDash-Strukturen erfüllt. Des Weiteren ist in Abb. 7.6 bereits zu erkennen, dass die Größe typischer QDash-Strukturen von Probe A bis Probe E stets zunimmt. Die nominelle Schichtdicke, die der einzige Wachstumsparameter ist, der die fünf Proben unterscheidet, besitzt somit starken Einfluss auf die sich ergebende Größe der QDash-Strukturen.

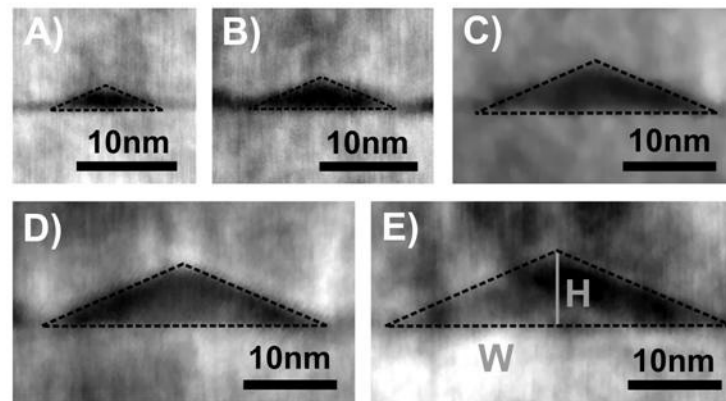


Abb. 7.6 Hellfeldaufnahmen des Querschnitts der QDash-Strukturen A bis E

Zur genauen Analyse dieses Verhaltens wurde daher anhand der vorhandenen Daten der Zusammenhang zwischen Höhe und Breite und der nominell angebotenen InAs-Schichtdicke ausgewertet. Das Ergebnis der statistischen Evaluation ist in Abb. 7.7 (links) dargestellt. Es zeigt sich eine überaus deutliche lineare Abhängigkeit sowohl für die Breite W als auch für die Höhe H von der nominell angebotenen InAs-Schichtdicke. Dieses überraschend einfache Wachstumsverhalten kommt dadurch zustande, dass die Bedeckung der Probenfläche mit den Quantenstrukturen nahezu 100% beträgt (wie z.B. in Abb. 7.3 bereits gezeigt). Somit muss zwangsläufig die Größe der QDash-Strukturen zunehmen, da das angebotene InAs vollständig auf die Probe abgeschieden wird und nicht verschwinden kann. Da zudem der Winkel zwischen Basis- und Seitenfläche stets konstant 23° beträgt, ist notwendigerweise die Größe der entstehenden QDash-Strukturen linear abhängig von der nominellen InAs-Schichtdicke.

In Abb. 7.7 ist hierzu die statistische Evaluierung des Zusammenhangs zwischen Höhe und Breite dargestellt [Sa05b]. Der gut zu erkennende lineare Zusammenhang verifiziert das konstante Verhältnis von Breite zu Höhe in jeder Probe und ergibt den konstanten Winkel von 23° zwischen Basis- und Seitenfläche. Zu sehr ähnlichen Ergebnissen führten Untersuchungen von Márquez et al. bezüglich des Winkels der Seitenflächen von InAs-QD-Strukturen gewachsen auf GaAs-Substrat. Gefunden wurden hier typische Winkel von $24^\circ \pm 2^\circ$ zwischen Seitenfläche und [110]-Richtung. Die atomar aufgelösten Aufnahmen mittels RTM an diesen nicht überwachsenen QD-Strukturen wurden aufgrund der guten Winkelübereinstimmung der Millerebenenschar {137} zugeordnet [Ma01b].

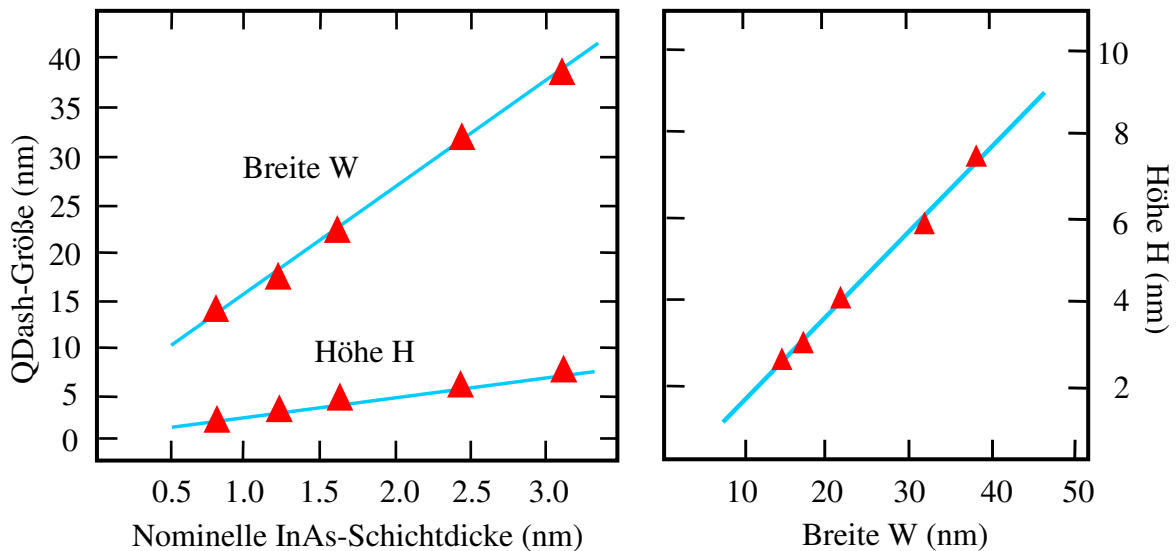


Abb. 7.7 Statistische Evaluierung des linearen Zusammenhangs zwischen Höhe bzw. Breite und nomineller InAs-Schichtdicke (links) und des linearen Zusammenhangs zwischen Höhe und Breite (rechts)

7.4 Chemische Analyse

Die bisher gezeigten morphologischen und strukturellen Eigenschaften entsprechen eindeutig größenkontrollierten Strukturen. Allerdings setzt die gesamte bisherige Diskussion stets voraus, dass der chemische Gehalt der Strukturen konstant ist und dass sich keine Durchmischungen ergeben. Die Verteilung der chemischen Komposition innerhalb einer QDash-Struktur und die absolute chemische Materialkomposition werden daher im Folgenden diskutiert. Die Verteilung des Materials innerhalb der QDash-

Strukturen kann anhand der aufgenommenen Z-Kontrastabbildungen bestimmt werden, da die Intensität des Z-Kontrastsignals direkt von der mittleren Ordnungszahl abhängt. Theoretisch möglich wäre, dass sich die Gruppe-III-Elemente vermischen. Indium aus den InAs-QDash-Strukturen könnte in das einbettende quaternäre $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.23}\text{Al}_{0.24}\text{As}$ diffundieren und umgekehrt könnte ein Teil des Gallium- und Aluminium-Anteils in die QDash-Strukturen gelangen. Eine Durchmischung wäre im Z-Kontrastmikroskopbild jedoch leicht zu erkennen, da Indium ($Z = 49$) eine relativ hohe Ordnungszahl besitzt, wohingegen Gallium ($Z = 31$) und Aluminium ($Z = 13$) deutlich geringere Ordnungszahlen haben, was sich als Helligkeitsänderungen im Z-Kontrastmikroskopbild auswirken würde.

Wie z.B. in Abb. 7.3 zu erkennen ist, zeigen sich keine systematischen Intensitätsänderungen innerhalb des dreieckigen Querschnitts der QDash-Strukturen. Eine Vermischung der Gruppe-V-Elemente braucht bei dieser Diskussion nicht in Betracht gezogen werden, da sowohl im QDash als auch im quaternären Material Arsen als einziges Gruppe-V-Element vorhanden ist. Hieraus muss gefolgert werden, dass die Quantenstrukturen chemisch homogen gewachsen sind. Des Weiteren sind ebenfalls keine Indium-Diffusionen aus den mit Indium angereicherten QDash-Strukturen in das einbettende Material zu erkennen. Andernfalls müssten helle Bereiche in den Z-Kontrastbildern über- bzw. unterhalb der Quantenstrukturen im Querschnitt zu erkennen sein. Die Auswertungen der Z-Kontrastaufnahmen lassen jedoch auch außerhalb der QDash-Strukturen keine systematischen Helligkeitsverläufe und somit qualitativ keine Vermischungen der Gruppe-III-Elemente erkennen.

Die absolute chemische Komposition der InAs QDash-Strukturen kann präzise durch die EELS Methode bestimmt werden. Die gewählten Messpunkte zur Ermittlung der EEL-Spektren sind in der Z-Kontrastmikroskopaufnahme in Abb. 7.8 (rechts) dargestellt [Sa05b]. Zur Bestimmung der absoluten chemischen Komposition der QDash-Strukturen wurden EEL-Spektren von Indium-M-Kanten zentral im dreieckigen QDash-Querschnitt und im quaternären $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.23}\text{Al}_{0.24}\text{As}$ aufgenommen. Wie im Diagramm in Abb. 7.8 zu erkennen ist, zeigt sich, dass das Indium-M-Kantensignal der QDash-Strukturen deutlich intensitätsreicher als das Signal des quaternären $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.23}\text{Al}_{0.24}\text{As}$ ist. Da sich im Z-Kontrastbild keine Vermischungen des einbettenden Materials zeigten und da der Messpunkt zudem weit von den QDash-Strukturen entfernt gewählt wurde, wird im Folgenden das quaternäre $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.23}\text{Al}_{0.24}\text{As}$ als Referenz zur Bestimmung des absoluten Materialgehalts genutzt werden, da der atomare Indiumgehalt von 53% durch die Herstellung der Proben mittels GSMBE sehr präzise einstellbar ist.

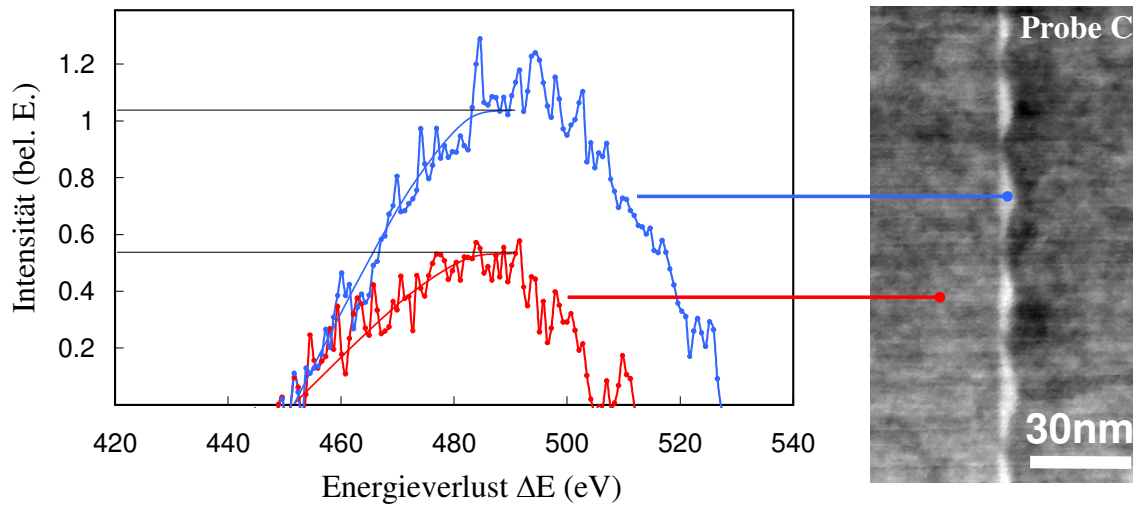


Abb. 7.8 Indium-M-Kanten EEL-Spektren von QDash-Strukturen und des umgebendem quaternären Materials (links). Die zugehörigen Messpunkte zeigt die Z-Kontrastmikroskopaufnahme (rechts)

Zur EELS-Auswertung erfolgte eine geeignete Normierung der Spektren, so dass die integrierte Intensität des quaternären $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.23}\text{Al}_{0.24}\text{As}$ einen Materialgehalt von $x=0.53$ ergibt. Die gleiche Normierung ist im Anschluss daran auf die EEL-Spektren der QDash-Strukturen angewendet worden. Resultierend ergab sich ein atomarer Indiumgehalt von $x=1$ innerhalb der experimentellen Fehlertoleranz (im Prozentbereich). Hieraus kann geschlossen werden, dass die QDash-Strukturen aus reinem InAs bestehen und dass während des Wachstums und Überwachsens keine Vermischung der Gruppe-III-Elemente erfolgt ist. Ein ähnliches Verhalten wurde von Létoublon et al. und Grenier et. al an selbstorganisierten (nicht überwachsenen) InAs/InP- QDash-Strukturen beobachtet. Es wurde hier mit der GIDAFS-Messmethode* durch makroskopische Mittlung über einen größeren Probenbereich übereinstimmend ermittelt, dass die untersuchten QDash-Strukturen ebenfalls aus reinem InAs bestehen und sich auch hier keine Durchmischungen zeigten [Gr02, Le04].

* GIDAFS steht für Grazing Incidence Diffraction Anomalous Fine Structure. Diese Messmethode nutzt die chemisch sensitive Beugung von Röntgenstrahlen nahe einer Absorptionskante (z.B. As-K-Kante) aus. Durch den Vergleich mit Simulationen ist die Bestimmung quantitativer Materialkompositionen möglich.

Die angeführten Resultate zeigen, dass es möglich ist, die Größe von InAs/In_{0.53}Ga_{0.23}Al_{0.24}As-QDash-Strukturen lediglich durch die Variation der nominellen InAs-Schichtdicke zwischen 0.8 nm und 3.1 nm gezielt einstellen zu können. Ungeklärt ist jedoch die theoretische Erklärung, warum die Größenmanipulation bei diesen Strukturen im Prinzip so einfach durchzuführen ist. Versucht man das Wachstum der QDash-Strukturen zu verstehen und mit dem theoretisch sehr gut verstandenen Wachstum von QD-Strukturen zu vergleichen, führt dies zu Widersprüchen: Bei InAs-QD-Strukturen können Form und Größe durch die Minimierung der Summe aus Oberflächen- und Verspannungsenergie modelliert werden [Te93, Mo98]. Die Wachstumskinetik wird durch Nukleations- und anschließende Reifungsprozesse beschrieben. Es kommt also erst zu einer sogenannten Keimbildung, die sich anschließend bei zunehmender Materialzufuhr (z.B. mit InAs) weiter vergrößert.

Die Entstehung der länglichen Form der QDash-Strukturen kann durch unterschiedliche Überlegungen erklärt werden. Dass die Verwendung von unterschiedlichen Substraten zu länglich geformten Quantenstrukturen führen kann, zeigten Nötzel et al. durch einen Vergleich von (100)- und (311)-InP-Substraten [Nö95]. Balakrishnan et al. vermuten, dass das QDash-Wachstum durch eine Oberflächenbindungs-Asymmetrie erklärt werden kann, die die Migration entlang einer Kristallachse verursacht (hierdurch wird die Oberflächenenergie reduziert) [Ba04]. González et al. führen diese Oberflächenbindungs-Asymmetrie anhand untersuchter InAs/InP-QDash-Strukturen auf das unterschiedliche Gruppe-V-Element (Arsen bzw. Phosphor) zurück und geben an, dass diese Asymmetrie im Materialsystemen InAs/GaAs (Gruppe-V-Element: Arsen) nicht auftreten kann [Go04]. Demzufolge hätten sich jedoch im Materialsystem InAs/In_{0.53}Ga_{0.23}Al_{0.24}As keine QDash-Strukturen selbstorganisiert ausbilden dürfen. Auch die Nukleations- und Reifungsprozessstheorie (siehe Kapitel 3) kann das Wachstumsverhalten der hier untersuchten QDash-Strukturen nicht vollständig richtig beschreiben, da bei den fünf Proben die dreieckigen Querschnitte der einzelnen QDash-Struktur in einer Probe stets quasi in Kontakt mit der benachbarten QDash-Struktur standen. Würde die Theorie von Nukleation und Reifen hier angewendet, so müssten die QDash-Strukturen in Probe A (kleinste Strukturgröße) entweder freistehen oder die QDash-Strukturen in Probe E müssten quasi ineinander ragen. Da allerdings bei den fünf Proben weder freistehende noch sich überlappende QDash-Strukturen vorgefunden wurden, muss zwangsläufig eine stetige Restrukturierung während der Wachstumsphase stattgefunden haben.

Großen Einfluss auf die abschließende Morphologie von Quantenstrukturen könnte außerdem dem Einbetten der QDash-Strukturen zukommen. So konnten Wu et al. demonstrieren, dass auch SiGe-QD-Strukturen durch das Einbetten in eine Silizium-Matrix bei verschiedenen Temperaturen ihre pyramidale Form, ihre Größe und ihre Wachstumsdichte stark ändern können [Wu05b].

7.5 Einstellung der Emissionsspektren

Die Ergebnisse der morphologischen, strukturellen und chemischen Analyse zeigen eindeutig, dass die hergestellten InAs-QDash-Strukturen über einen weiten Bereich größenkontrollierbar sind. Die chemische Komposition und die Form der QDash-Strukturen verändern sich nicht mit der Größe, die Größe selbst kann linear über die nominelle InAs-Schichtdicke während des Wachstums eingestellt werden. Die unterschiedliche Größe der Quantenstrukturen sollte somit aufgrund der Größenquantisierung direkten Einfluss auf die optischen Eigenschaften haben. Zur Untersuchung des Einflusses der größenabhängigen quantenmechanischen Effekte auf die Bandstruktur sind die entsprechenden PL-Spektren aufgenommen worden (Charakterisierung von A. Somers / Universität Würzburg). Die normierten PL-Spektren aller fünf QDash-Struktur-Proben sind in Abb. 7.9 dargestellt [Kü06]. Zu beobachten ist eine stetige Verschiebung hin zu längeren Wellenlängen der Peak-Positionen im PL-

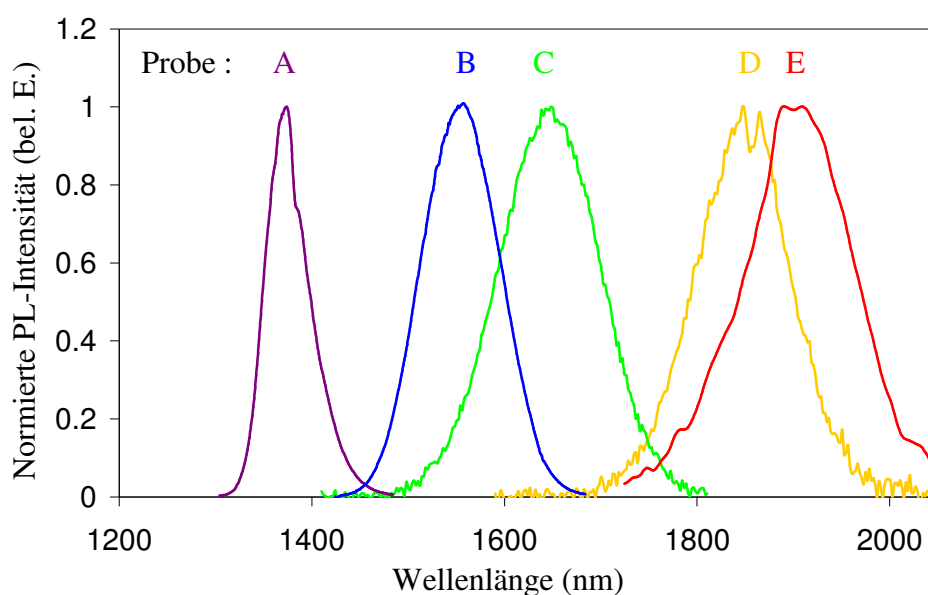


Abb. 7.9 QDash-Photolumineszenz-Spektren der fünf Proben A bis E

Spektrum von Probe A (Peak bei $\lambda = 1.37 \mu\text{m}$) bis hin zu Probe E (Peak bei $\lambda = 1.9 \mu\text{m}$). Auffällig ist die gute Übereinstimmung zwischen den optischen PL-Spektren und den strukturellen Daten (siehe Abb. 7.5): Durch die stärksten Quantisierungs-Effekte zeigen die kleinsten QDash-Strukturen auch die kurzwelligste Emissionswellenlänge. Die Emissionswellenlängen der in diesem Kapitel vorgestellten QDash-Strukturen gleicher Morphologie und gleicher chemischer Zusammensetzung konnten so in einem weiten Bereich von $1.37 \mu\text{m}$ bis hin zu $1.9 \mu\text{m}$ direkt eingestellt werden. Die größenkontrollierten QDash-Strukturen wurden inzwischen erfolgreich als aktive Zone von Laser-Dioden eingesetzt und charakterisiert (siehe auch [Re05]).

8 Zusammenfassung

Selbstorganisierte In(Ga)As-Quantenstrukturen bieten großes Potential zur Verbesserung optoelektronischer Bauelemente (z.B. Laser-Dioden). Durch die prinzipiell relativ einfache Herstellbarkeit selbstorganisierter In(Ga)As-Quantenstrukturen in Halbleiterschichten sind diese Strukturen Gegenstand aktueller Forschung. Die Größe dieser Quantenstrukturen beträgt im Querschnitt lediglich einige Nanometer. Daher bieten nur wenige Messmethoden einen direkten Zugang zur Morphologie und zur chemischen Zusammensetzung solch kleiner Strukturen. Wichtige Bauelement-Kenngrößen, wie z.B. die Emissionswellenlänge oder die Schwellstromdichte, sind zwar mittels makroskopischer Methoden zugänglich, für Bauelement-Weiterentwicklungen, basierend auf einem tatsächlichen Verständnis der strukturell bedingten optischen und elektrischen Eigenschaften, ist allerdings die mikroskopische Analyse der hergestellten Strukturen unabdingbar. Hierzu bietet sich die Raster-Transmissionselektronenmikroskopie an, da hier eine Vielzahl unterschiedlicher Messmethoden nahezu zeitgleich auf einer Nanometerskala einsetzbar ist.

Ziel dieser Arbeit war es, die analytischen Methoden der Raster-Transmissionselektronenmikroskopie zur Untersuchung selbstorganisierter In(Ga)As-Quantenstrukturen anzuwenden. Mit den abbildenden Methoden Z-Kontrast und Hellfeld (Ortsauflösungen im Subnanometerbereich) und insbesondere mit den Möglichkeiten der quantitativen chemischen EELS-Analyse (Elektronenenergieverlustspektroskopie; Genauigkeit elementabhängig ca. 1-2 %) des Raster-Transmissionselektronenmikroskops (RTEMs) sollten grundsätzliche Fragestellungen hinsichtlich der Morphologie und der chemischen Eigenschaften selbstorganisierter Quantenstrukturen beantwortet werden, um hierdurch die Herstellung optimierter Quantenstrukturen zu ermöglichen. Anhand unterschiedlicher Probenreihen konnte hierzu das Potential der Raster-Transmissionsmikroskopie demonstriert werden.

Durch die hohe Ortsauflösung des RTEMs konnten u.a. essentielle morphologische und strukturelle Parameter im Wachstumsverhalten von „Dot in a Well“-Strukturen (DWell) und von vertikal korrelierten Quantum Dots (QDs) analysiert werden.

Zur Optimierung von DWell-Strukturen wurden Proben untersucht, deren nominelle InAs-QD-Wachstumsposition innerhalb des einbettenden $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ -Quantum Wells (QWs) gezielt variiert wurde. Die RTEM-Messungen zeigten, dass eine Verringerung der unteren $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ -Schichtdicke im Vergleich zur Dicke der oberen $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ -Schicht zu einer deutlich symmetrischeren Einbettung des QDs in die $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ -Matrix des QWs führt. In sehr guter Übereinstimmung zum gefundenen Wachstumsverhalten zeigte die Probe mit symmetrischer DWell-Struktur bessere optische Eigenschaften, wie eine geringere PL-Peak-Linienbreite, eine höhere absolute PL-Intensität und eine geringere Schwellstromdichte entsprechender Laser-Dioden.

Zur Untersuchung von vertikal korrelierten QDs wurden mit den orts aufgelösten Methoden der Raster-Transmissionselektronenmikroskopie Proben mit zwei Lagen nominell identischer $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ -QDs untersucht, deren GaAs-Barrierendicke gezielt variiert wurde. Es konnte gezeigt werden, dass die Verringerung der Barrierendicke sich stark auf die räumliche vertikale Korrelation auswirkt. Durch eine 4 nm dicke Barrierenschicht getrennte QDs besaßen eine wesentlich stärkere räumliche Korrelation der Wachstumsposition in Bezug auf die untere QD-Lage verglichen mit QDs, die durch eine 8 nm dicke Barrierenschicht getrennt waren. Messungen von Größe und chemischer Zusammensetzung der QDs in den untersuchten Proben zeigten hierbei, dass unabhängig von dem jeweiligen Korrelationsgrad morphologisch und chemisch identische QDs entstanden sind, die durch eine reine GaAs-Barriere getrennt sind. Dies ist im Hinblick auf mögliche Anwendungen gekoppelter Quantenstrukturen von besonderer Bedeutung.

Neben der Möglichkeit morphologische und strukturelle Untersuchungen auf einer Nanometerskala durchführen zu können, bietet das RTEM in Verbindung mit der EELS-Methode großes Potential zur chemischen Analyse von Quantenstrukturen.

Untersucht wurde eine Probenreihe selbstorganisierter InGaAs/GaAs-Strukturen auf GaAs-Substrat, deren Verspannung durch Variieren des Ga-Gehalts des InGaAs-Materials zwischen 2.4 % und 4.3 % verändert worden ist, um die selbstorganisierte Bildung unterschiedlicher Quantenstrukturen zu ermöglichen. In der Probe mit der größten Verspannung stellte sich erwartungsgemäß heraus, dass QD-Strukturen entstanden sind. Ein Verspannungswert von 3.2 % führte, wie u.a. mittels EELS gezeigt werden konnte, zur simultanen Ausbildung von QD-Strukturen und Quantum Dash (QDash)-Strukturen. Messungen an der geringstverspannten Probe belegen die selbstorganisierte Ausbildung

von QDashes. Somit konnte insgesamt an dieser Probenreihe ein verspannungsabhängiger Morphologieübergang von QDash- zu QD-Strukturen beobachtet werden.

Die genauen morphologischen und chemischen Eigenschaften von QDash-Strukturen auf InP-Substraten, deren Größe beim Wachstum gezielt kontrolliert variiert werden sollten, wurden mit den verschiedenen RTEM-Methoden (u.a. EELS) analysiert. Bei der Herstellung von fünf unterschiedlichen Proben wurde hierzu die Quantität des angebotenen InAs über einen relativ weiten Bereich variiert. Mit dem RTEM konnte so der Einfluss dieses (einzig variierten) Parameters auf das QDash-Wachstum mikroskopisch auf einer Nanometerskala analysiert werden.

Die Auswertung von Querschnittsaufnahmen der unterschiedlichen Proben zeigte QDashes mit einem stets dreieckigen Querschnitt. Die Extraktion der Winkel des Querschnittsdreiecks ergab zudem, dass die Form der QDashes in allen hergestellten Proben exakt erhalten blieb. Eine statistische Evaluierung des Zusammenhangs zwischen Höhe und Breite der dreieckigen Querschnittsform verifizierte dieses Ergebnis: Lediglich die absolute Größe der Querschnitte war unterschiedlich. Im Hinblick auf die Größenkontrolle konnte gezeigt werden, dass sich Höhe und Breite des Querschnittsdreiecks der QDashes direkt proportional zur nominell abgeschiedenen InAs-Schicht ändern. Chemische Untersuchungen mittels EELS und Z-Kontrast zeigten, dass sich in den QDashes und in der einbettenden Kristallmatrix keine nennenswerten Durchmischungen mit anderen Elementen ergaben, d.h. die selbstorganisierten QDashes bestanden zu 100 % aus InAs. Die direkte Größenkontrolle selbstorganisierter QDashes ermöglicht eine Einstellung der Emissionswellenlänge von 1.3 μm bis hin zu 1.9 μm durch die Variation lediglich eines Herstellungsparameters.

Insgesamt konnten somit im Rahmen dieser Arbeit bedeutsame morphologische, strukturelle und chemische Untersuchungen an In(Ga)As-Quantenstrukturen durchgeführt werden. Wichtige Fragestellungen unterschiedlicher In(Ga)As-Quantenstrukturen wurden mit dem RTEM erfolgreich beantwortet. Speziell die bislang in der Erforschung selbstorganisierter In(Ga)As-Quantenstrukturen kaum systematisch genutzte Analyse-methode EELS konnte zur Beantwortung dieser und anderer Fragestellungen erfolgreich eingesetzt werden.

Anhang

A Das Programm Nanomess

Um geometrische Ausdehnungen (z.B. Schichtdicken und Strukturgrößen) genau und reproduzierbar ermitteln zu können, ist es sinnvoll, einige Bereiche der Auswertung zu automatisieren. Hierzu wurde im Rahmen dieser Arbeit speziell für die Auswertung der Z-Kontrast- und Hellfelddaufnahmen unter Verwendung der freien Programmiersprache Profan das Auswerteprogramm Nanomess entwickelt. Die Spezifikationen des Programms waren dabei durch die Eigenschaften der Bildausleseeinheit des verwendeten RTEMs bestimmt. Die Bildausleseeinheit gibt Bilder im *.tif-Format mit einer Größe von 512*512 Pixel aus. Der Pixelhelligkeit wird während des Auslesens (entsprechend der Intensität am Z-Kontrast- oder Hellfelddetektor) eine von 256 Graustufen (8-bit Farbtiefe) zugewiesen. Innerhalb eines Bildes wird dabei den Pixeln am Ort der geringsten Intensität die Graustufe 0 (schwarz) und am Ort der höchsten Intensität die Graustufe 255 (weiß) zugeordnet. Nanomess ist geschrieben worden, um wiederum direkten Zugang zur Graustufung aller Pixel zu erhalten. Die 8bit-Graustufenbilder können in Nanomess eingelesen und analysiert werden.

Eine wichtige Funktion des Programms ist die Möglichkeit die Bestimmung von Dicken zu präzisieren, indem man das Intensitäts-Rauschen der Messung berücksichtigt. Hierzu können z.B. zeilenweise Pixel-Helligkeiten addiert werden, wodurch das statistische Rauschen durch Bildung des arithmetischen Mittelwerts verringert wird. In Nanomess kann hierzu, wie in Abb. A.1 zu erkennen, ein Bereich einiger Bildzeilen ausgewählt und addiert werden (siehe z.B. der Bereich zwischen den beiden horizontalen roten Steifen in Abb. A.1). Das sich ergebende gemittelte Helligkeitsprofil dieser Zeilen kann nun entweder als Datei separat abgespeichert und mittels anderer Programme (z.B. Rückfaltungsprogramme) weiter aufbereitet oder in Nanomess ausgewertet werden. Mittels Nanomess können Peaks im Helligkeitsprofil automatisch erkannt und deren Halbwertsbreite (FWHM) unter Angabe des Maßstabs bestimmt werden. Vorteilhaft ist die Verwendung der im Programm eingebundenen FWHM-Routine hinsichtlich einer

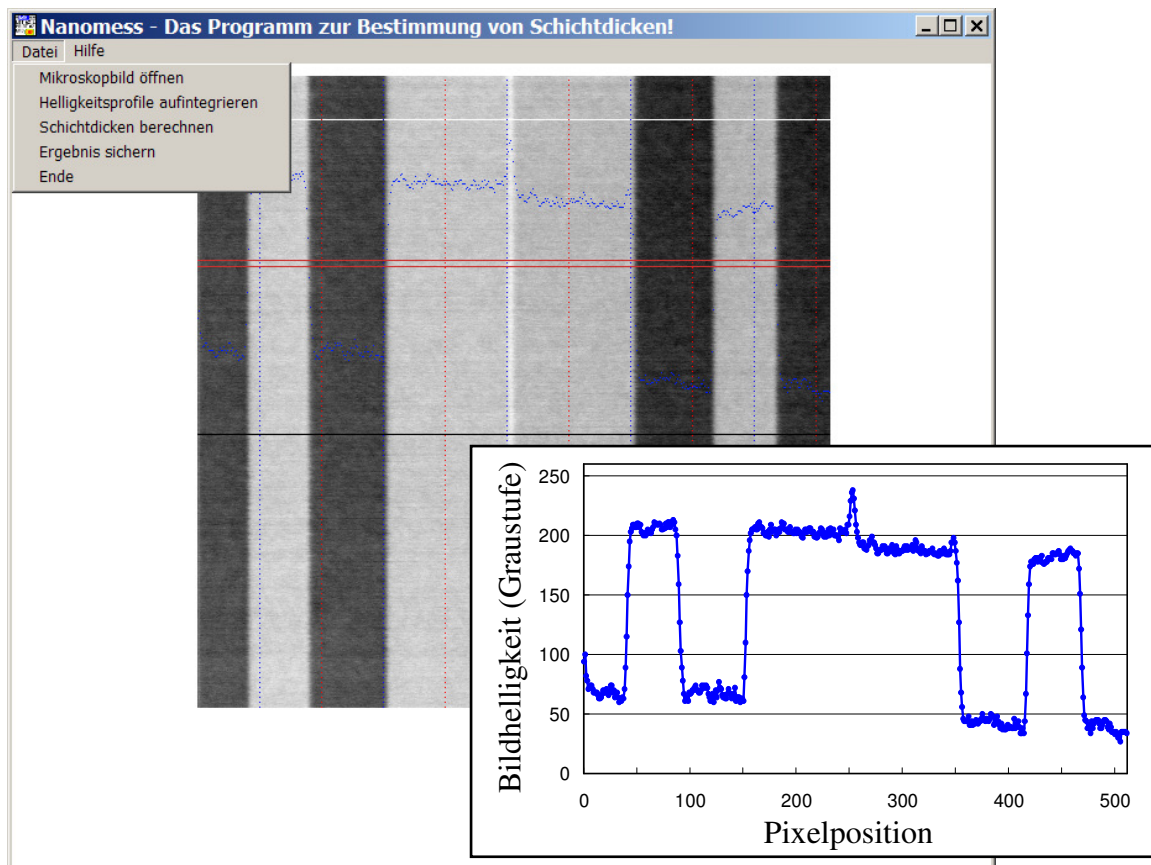


Abb. A.1 Screenshot der Benutzeroberfläche und der in das Programm Nanomess eingelesenen Z-Kontrastaufnahme einer Probe mit einem QW (heller Streifen in der Mitte) und einem Bragg-Übergitter (außen). Das Diagramm im Inset zeigt vergrößert den ermittelten Bildhelligkeitsverlauf

schnellen, einfachen und vor allem reproduzierbaren Bestimmung der zu untersuchenden Schichtdicken. Exemplarisch ist hierzu in Abb. A.1 in Nanomess eine Z-Kontrastaufnahme einer Probe eingelesen worden, die aus einem InGaAs-QW (senkrechter heller Streifen in der Bildmitte) und einem AlAs/GaAs Bragg-Übergitter besteht (AlAs verursacht durch die geringste Ordnungszahl die dunklen senkrechten Streifen und GaAs erscheint in der Z-Kontrastaufnahme hellgrau). Das ermittelte Helligkeitsprofil des Bereichs zwischen den roten horizontalen Linien zeigt das dem Screenshot überlagerte Diagramm. Deutlich zu erkennen sind im Diagramm sämtliche in der Z-Kontrastaufnahme vorhandenen Schichten. Entsprechend der Ordnungszahl sind die jeweiligen Schichten leicht zuzuordnen. Die interessierenden Schichtdicken können abschließend unter Angabe des Maßstabs (der Bildbreite) reproduzierbar automatisch bestimmt werden.

B Konstanten

Konstante	Wert	Bezeichnung
c_0	$2,99792458 \cdot 10^8 \text{ m/s}$	Lichtgeschwindigkeit im Vakuum
e	2,7182818	Eulersche Zahl
k_B	$1,380658 \cdot 10^{-23} \text{ Ws/K}$	Boltzmann-Konstante
h	$6,6261755 \cdot 10^{-34} \text{ Ws}^2$	Plancksches Wirkungsquantum
\hbar	$1,0545727 \cdot 10^{-34} \text{ Ws}^2$	reduziertes Plancksches Wirkungsquantum
j	$\sqrt{-1}$	Imaginäre Einheit
m_e	$9,1093897 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$	Ruhemasse des Elektrons
q	$1,60217733 \cdot 10^{-19} \text{ As}$	Elementarladung
ϵ_0	$8,854187817 \cdot 10^{-12} \text{ As/Vm}$	Elektrische Feldkonstante
π	3,1415926538	Kreiszahl Pi

C Formelzeichen

Formelzeichen	Bedeutung
a	Gitterkonstante
A	Fitparameter
\vec{a}_i	Basisvektor des Kristallgitters im Ortsraum
\vec{a}_i^*	Basisvektor des reziproken Gitterraums
d_{hkl}	Gitterebenenabstand der hkl-Netzebenen
e	Elementarladung
E	Energie eines Elektrons
E_0	Energie eines Primärelektrons
E_{kin}	Kinetische Energie eines Elektrons
E_m	Mittlerer Energieverlust
E_R	Ruheenergie eines Elektrons; $E_R \approx 511 \text{ keV}$
F	Relativistischer Korrekturfaktor
\vec{F}_{el}	Kraft durch elektrostatisches Coulombfeld
\vec{g}_{hkl}	Reziproker Gittervektor
h	Millersche Indize zur Bezeichnung von Kristallebenen
H	Höhe
i	Index: 1, 2, 3
I	Intensität
I_0	Integrierte Intensität des Zero-loss-Peaks
I_{Kante}	Intensität der vom Untergrund befreiten Ionisationskante
I_L	Integrierte Intensität des Spektrums (bis ca. 50 eV)
I_T	Integrierte Intensität des gesamten Spektrums
k	Millersche Indize zur Bezeichnung von Kristallebenen
l	Millersche Indize zur Bezeichnung von Kristallebenen
n	Ganzzahliger Wert: ..., -3, -2, -1, 0, 1, 2, 3, ...
$N_{A(B)}$	Anzahl der Atome pro Volumen des Elements A (B)
N_{Ref}	Anzahl der Atome pro Volumen einer Referenz
p	Impuls des Elektrons
r	Fitparameter
W	Breite
W_g	Bandlückenenergie

x	Atomarer Anteil (0% \rightarrow $x=0$; 100% \rightarrow $x=1$)
Z	Ordnungszahl
α	Winkel
β	Kollektoröffnungswinkel
Γ	Anpassungsbereich
Δ	Integrationsbereich
ΔE	Energiedifferenz
λ	Wellenlänge
λ_m	Mittlere freie Weglänge
μ	Summenindex
ν	Summenindex
ϑ	Winkel der einfallenden Elektronenwelle
σ	Wirkungsquerschnitt
$\sigma_{\text{Kante,A(B)}}$	Wirkungsquerschnitt der (K, L, M, ...)-Schale des Elements A (B)
Ω	Raumwinkel

Literaturverzeichnis

- [Ah83] C.C. Ahn, O.L. Krivanek, *EELS Atlas – A reference guide of electron energy loss spectra covering all stable elements*, GATAN Inc. (1983)
- [Ak04] K. Akahane, N. Yamamoto, N. Ohtani, *Physica E* **21**, 295 (2004)
- [Ar82] Y. Arakawa, H. Sakaki, *Appl. Phys. Lett.* **40**, 939 (1982)
- [Aw02] D.D. Awschalom, D. Loss, N. Samarth, *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, Springer, Berlin (2002)
- [Ba58] E. Bauer, *Z. Kristallogr.* **110**, 372 (1958)
- [Ba04] G. Balakrishnan, S. Huang, T.J. Rotter, A. Stintz, L.R. Dawson, K.J. Malloy, H. Xu, D.L. Huffaker, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 2058 (2004)
- [Be00] S. Benjamin, *Science* **22**, 2273 (2000)
- [Bh92] L.M. Bharadwaj, P. Bonhomme, J. Faure, G. Balossier, R.P. Bajpai, *Proc. SPIE* **1593**, 186 (1992)
- [Bi99] D. Bimberg, M. Grundmann, N.N. Ledentsov, *Quantum dot heterostructures*, Wiley, Chichester (1999)
- [Bo95] B. Bollig, *Raster-Transmissionselektronenmikroskopie an $\text{ZnS}_x\text{Se}_{1-x}$ / ZnSe-Heteroschichten*, Shaker Verlag, Dissertation Universität Duisburg (1995)
- [Bo00] D. Boumeester, A. Ekert, A. Zeilinger, *The Physics of Quantum Information*, Springer, Berlin (2000)
- [Br96] A.N. Broers, A.C.F. Hoole, J.M. Ryan, *Micro. Engineer.* **32**, 131 (1996)

- [Br98] S.H. Brongersma, M.R. Castell, D.D. Perovic, M. Zinke-Allmang, Phys. Rev. Lett. **80**, 3795 (1998)
- [Br01] G. Brockt, *Nano-Charakterisierung struktureller und optischer Eigenschaften von Grupp-III-Nitrid-Heterostrukturen im Raster-Transmissionselektronenmikroskop (RTEM)*, Dissertation Universität Duisburg (2001)
- [Bu06] Bundesministerium für Bildung und Forschung, Referat Öffentlichkeitsarbeit Berlin, *Nano-Initiative-Aktionsplan 2010*, WAZ Druck Duisburg (2006)
- [Ca05] E. Carlino, V. Grillo, Phys. Rev. B **71**, 235303 (2005)
- [Ch74] L.L. Chang, L. Esaki, R. Tsu, Appl. Phys. Lett. **24**, 593 (1974)
- [Ch02] J.X. Chen, A. Markus, A. Fiore, U. Oesterle, R.P. Stanley, J.F. Carlin, R. Houdré, M. Ilegems, L. Lazzarini, L. Nasi, M.T. Todaro, E. Piscopiello, R. Cingolani, M. Catalano, J. Katcki, J. Ratajczak, J. Appl. Phys. **91**, 6710 (2002)
- [Ch03] J.M. Chauveau, Y. Androussi, A. Lefebvre, J. Di Persio, Y. Cordier, J. Appl. Phys. **93**, 4219 (2003)
- [Ch07] C.K. Chia, Y.W. Zhang, S.S. Wong, A.M. Yong, S.Y. Chow, S.J. Chua, J. Guo, Appl. Phys. Lett. **90**, 161906 (2007)
- [Co03] G. Costantini, C. Manzano, R. Songmuang, O.G. Schmidt, K. Kern, Appl. Phys. Lett. **82**, 3194 (2003)
- [Cr83] H.G. Craighead, R.E. Howard, L.D. Jackel, P.M. Mankievich, Appl. Phys. Lett. **42**, 38 (1983)
- [Cr01] P.A. Crozier, M. Catalano, R. Cingolani, A. Passaseo, Appl. Phys. Lett. **79**, 3170 (2001)
- [De04] H. Dery, E. Benisty, A. Epstein, R. Alizon, V. Mikhelashvili, G. Eisenstein, R. Schwertberger, D. Gold, J.P. Reithmaier, A. Forchel, J. Appl. Phys. **95**, 6103 (2004)

- [Di74] R. Dingle, W. Wiegmann, C.H. Henry, Phys. Rev. Lett. **33**, 827 (1974)
- [Do98] A.D. Dorneich, R.H. French, H. Müllerjans, S. Loughin, M. Rühle, J. Microscopy **191**, 286 (1998)
- [Eb98] Y. Ebiko, S. Muto, D. Suzuki, S. Itoh, K. Shiramine, T. Haga, Y. Nakata, N. Yokoyama, Phys. Rev. Lett. **80**, 2650 (1998)
- [Eg96] R.F. Egerton, *Electron energy-loss spectroscopy in the electron microscope*, Springer Verlag GmbH, 2te Auflage (1996)
- [Fr49] F.C. Frank, J.H. van der Merwe, Proc. Roy. Soc. A **198**, 216 (1949)
- [Fu04] D. Fuster, M.U. González, Y. González, T. Ben, A. Ponce, S. Molina, J. Martínez-Pastor, Appl. Phys. Lett. **85**, 1424 (2004)
- [Ga94] L.A.J. Garvie, American Mineralogist **79**, 411-425 (1994)
- [Ge04] M. Gendry, C. Monat, J. Brault, P. Regreny, G. Hollinger, B. Salem, G. Guillot, T. Benyattou, C. Bru-Chevallier, G. Bremond, O. Marty, J. Appl. Phys. **95**, 4761 (2004)
- [Go85] L. Goldstein, F. Glas, J.Y. Marzin, M.N. Charasse, G. LeRoux, Appl. Phys. Lett. **47**, 1099 (1985)
- [Go04] M.U. González, L. González, J.M. García, Y. González, J.P. Silveira, F. Briones, Microelectron. J. **35**, 13 (2004)
- [Gr95] M. Grundmann, O. Stier, D. Bimberg, Phys. Rev. B **52**, no. 16, 11969 (1995)
- [Gr02] S. Grenier, M. Proietti, H. Renevier, L. Gonzalez, J. Garcia, J. Garcia, Europhys. Lett. **57**, 499 (2002)
- [Gu02] H.R. Gutiérrez, M.A. Cotta, J.R.R. Bortoleto, M.M.G. de Carvalho, J. Appl. Phys. **92**, 7523 (2002)

- [He89] M.A. Herman, H. Sitter, *Molecular Beam Epitaxy*, Springer Verlag GmbH, Berlin (1989)
- [He04] H. Heidemeyer, C. Müller, O.G. Schmidt, *Physica E* **23**, 237 (2004)
- [He07] L. He, A. Zunger, *Phys. Rev. B* **75**, 075330 (2007)
- [Hi77] P. Hirsch, A. Howie, R. Nicholson, D.W. Pashley, M.J. Whelan, *Electron microscopy of thin crystals*, Robert E. Krieger Publishing Co. Inc., Malabar, Florida (1977)
- [Ho04] J.M. Howe, V.P. Oleshko, *Application of valence electron energy-loss spectroscopy and Plasmon energy mapping for determining material properties at the nanoscale*, *J. Elec. Microscopy* **53**(4), pp. 339-351 (2004)
- [Hs06] T.P. Hsieh, H.S. Chang, W.Y. Chen, W.H. Chang, T.M. Hsu, N.T. Yeh, W.J. Ho, P.C. Chiu, J.I. Chyi, *Nanotech.* **17**, 512 (2006)
- [Hu98a] D.L. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O.B. Shchekin, D.G. Deppe, *Appl. Phys. Lett* **73**, 2564 (1998)
- [Hu98b] D.L. Huffaker, D.G. Deppe, *Appl. Phys. Lett* **73**, 520 (1998)
- [Il03] B. Ilahi, L. Sfaxi, F. Hassen, L. Bouzaïene, H. Maaref, B. Salem, G. Bremond, O. Marty, *Phys. Stat. Sol. (a)* **199**, 457 (2003)
- [Jo00] P.B. Joyce, T.J. Krzyzewski, G.R. Bell, T.S. Jones, S. Malik, D. Childs, R. Murray, *Phys. Rev. B* **62**, 10891 (2000)
- [Jo01] P.B. Joyce, T.J. Krzyzewski, G.R. Bell, T.S. Jones, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 3615 (2001)
- [Ka05] C. Kammerer, S. Sauvage, G. Fishman, P. Boucaud, G. Patriarche, A. Lemaître, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 173113 (2005)
- [Ke00] I. Kegel, T.H. Metzger, A. Lorke, J. Peisl, J. Stangl, G. Bauer, J.M. Garcia, P.M. Petroff, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1694 (2000)

- [Ki00] H. Kirmse, *Transmissionselektronenmikroskopische Untersuchungen von II-VI-Verbindungshalbleitern unterschiedlicher Dimensionierung*, Dissertation Humboldt-Universität zu Berlin (2000)
- [Ki03] J.S. Kim, J. H. Lee, S. U. Hong, W. S. Han, H.S. Kwack, C.W. Lee, D.K. Oh, J. Appl. Phys. **94**, 6603 (2003)
- [Ki04] T.W. Kim, E.H. Lee, K.H. Lee, J.S. Kim, H.L. Park, Appl. Phys. Lett. **84**, 595 (2004)
- [Kl01] F. Klopf, R. Krebs, J.P. Reithmaier, A. Forchel, IEEE Phot. Technol. Lett. **13**, 764 (2001)
- [Ko02] M. Kotrla, N.I. Papanicolaou, D.D. Vvedensky, L.T. Wille, *Atomistic aspects of epitaxial growth*, Springer Netherlands (2002)
- [Ko04] S. Kobayashi, C. Jiang, T. Kawazu, H. Sakaki, Jpn. J. Appl. Phys. **43**, L662 (2004)
- [Kr02] P. Kratzert, *Molekularstrahlepitaxie von II-VI Quantenpunkten*, Dissertation Humboldt-Universität Berlin (2002)
- [Kr03] R. Krebs, S. Deubert, J.P. Reithmaier, A. Forchel, J. Cryst. Growth **251**, 742 (2003)
- [La93] H. Lakner, *Ortsaufgelöste Charakterisierung von AlGaAs/InGaAs-Heteroschichten im Raster-Transmissionselektronenmikroskop (RTEM)*, Dissertation Universität Duisburg (1993)
- [Le99] L.F. Lester, A. Stinz, H. Li, T.C. Newell, E.A. Pease, B.A. Fuchs, K.J. Malloy, IEEE Phot. Technol. Lett. **11**, 931 (1999)
- [Lé04] A. Létoublon, V. Favre-Nicolin, H. Renevier, M.G. Proietti, C. Monat, M. Gendry, O. Marty, C. Priester, Phys. Rev. Lett. **92**, 186101-1 (2004)
- [Le06] J.H. Lee, Z.M. Wang, B.L. Liang, K.A. Sablon, N.W. Strom, G.J. Salamo, Semicond. Sci. Technol. **21**, 1547 (2006)

- [Le07] J.H. Lee, Z.M. Wang, B.L. Liang, K.A. Sablon, N.W. Strom, G.J. Salamo, J. Appl. Phys. **40**, 198 (2007)
- [Li01] X.J. Li, F.W. Yan, W.J. Zhang, R.G. Zhang, W.J. Liu, J.P. Ao, Q.M. Zeng, S.Y. Liu, C.G. Liang, Chin. Phys. Lett. **18**, 1147 (2001)
- [Li05] H.Y. Liu, M.J. Steer, T.J. Badcock, D.J. Mowbray, M.S. Skolnick, P. Navaretti, K.M. Groom, M. Hopkinson, R.A. Hogg, Appl. Phys. Lett. **86**, 143108 (2005)
- [Lo00] A. Lorke, R.J. Luyken, A.O. Govorov, J. Kotthaus, J.M. García, P.M. Petroff, Phys. Rev. Lett. **84**, 2223 (2000)
- [Lo01] A. Lorke, R.J. Luyken, J.M. Garcia, P.M. Petroff, Jpn. J. Appl. Phys. **40**, 1857 (2001)
- [Lo02] A. Lorke, R. Blossey, J.M. Garcia, M. Bichler, G. Abstreiter, Mat. Sci. Eng. B **88**, 225 (2002)
- [Ma88] T. Malis, J.M. Titchmarch, *Electron microscopy and analysis*, pp. 181, Adam Hilger Ltd., Bristol and Bosten, Massachusetts (1988)
- [Ma89] B.E. Maile, A. Forchel, R. Germann, J. Vac. Sci. Technol. **B 7 (6)**, 2030 (1989)
- [Ma01a] W. Ma, R. Nötzel, A. Trampert, M. Ramsteiner, H. Zhu, H.P. Schönherr, K.H. Ploog, Appl. Phys. Lett. **78**, 1297 (2001)
- [Ma01b] J. Márquez, L. Geelhaar, K. Jacobi, Appl. Phys. Lett. **78**, 2309 (2001)
- [Ma04] L. Mandreoli, *Density based Kinetic Monte Carlo Methods*, Dissertation Technische Universität Berlin (2004)
- [Me01] M. Meixner, E. Schöll, V.A. Shchukin, D. Bimberg, Phys. Rev. Lett. **87**, 236101 (2001)
- [Me03] M. Meixner, E. Schöll, Phys. Rev. B **67**, 121202(R) (2003)

- [Mi00] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. Schoenfeld, P. Petroff, L. Zhang, E. Hu, A. Imamoglu, *Science* **290**, 2282 (2000)
- [Mi03] P. Michler, *Single Quantum Dots*, Springer, Berlin (2003)
- [Mi04] P. Miska, J. Even, C. Platz, B. Salem, T. Benyattou, C. Bru-Chevallier, G. Guillot, G. Bremond, Kh. Moumanis, F.H. Julien, O. Marty, C. Monat, M. Gendry, *J. Appl. Phys.* **95**, 1074 (2004)
- [Mo33] N.F. Mott, H.S.W. Massey, *The theory of atomic collisions*, Claredon Press, Oxford (1933)
- [Mo98] N. Moll, M Scheffler, E. Pehlke, *Phys. Rev. B* **58**, 4566 (1998)
- [Na07] Y. Nan, *Focused Ion Beam Systems: Basics and Applications*, Cambridge University Press, Cambridge (2007)
- [Ne04] P.D. Nellist, M.F. Chisholm, N. Dellby, O.L. Krivanek, M.F. Murfitt, Z.S. Szilagyi, A.R. Lupini, A. Borisevich, W.H. Sides Jr., S. J. Pennycook, *Science* **305**, 1741 (2004)
- [Nö95] R. Nötzel, J. Temmyo, A. Kozen, T. Tamamura, T. Fukui, H. Hasegawa, *Appl. Phys. Lett* **66**, 19 (1995)
- [Nö96] R. Nötzel, *Semicond. Sci. Technol.* **11**, 1365 (1996)
- [Of05] P. Offermans, P.M. Koenraad, J.H. Wolter, K. Pierz, M. Roy, P.A. Maksym, *Phys Rev B* **72**, 165332 (2005)
- [Ol07] V.P. Oleshko, J.M. Howe, *J. Appl. Phys.* **101**, 054308 (2007)
- [Pa01] C. Paranthoen, N. Bertru, O. Dehaese, A. Le Corre, S. Loualiche, B. Lambert, G. Patriarchi, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 1751 (2001)
- [Po95] A. Ponchet, A. Le Corre, H. L'Haridon, B. Lambert, S. Salaün, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1850 (1995)

- [Qi01] Y. Qiu, P. Gogna, S. Forouhar, A. Stintz, L.F. Lester, Appl. Phys. Lett. **79**, 3570 (2001)
- [Ra02] A. Raab, G. Springholz, Appl. Phys. Lett. **81**, 2457 (2002)
- [Re97] L. Reimer, *Transmission electron microscopy. Physics of image formation and microanalysis*, 4th ed., Springer, Berlin (1997)
- [Re89] P. Rez, Ultramicroscopy **59**, 195 (1989)
- [Re04] G. Reuscher, D. Holtmannspötter, *Technologieanalyse Quantenoptik - Anwendung nicht klassischen Lichts*, Zukünftige Technologien **49**, VDI Technologiezentrum, Düsseldorf (2004)
- [Re05] J.P. Reithmaier, A. Somers, S. Deubert, R. Schwertberger, W. Kaiser, A. Forchel, M. Calligaro, P. Resneau, O. Parillaud, S. Bansropun, M. Krakowski, R. Alizon, D. Hadass, A. Bilenca, H. Dery, V. Mikhelashvili, G. Eisenstein, M. Gioannini, I. Montrosset, T.W. Berg, M. van der Poel, J. Mørk, B. Tromborg, J. Phys. D: Appl. Phys. **38**, 2088 (2005)
- [Ru11] E. Rutherford, Phil. Mag. **21**, 669 (1911)
- [Sa02] Y.G. Sadofyev, A. Ramamoorthy, B. Naser, J.P. Bird, S.R. Johnson, Y.H. Zhang, Appl. Phys. Lett. **81**, 1833 (2002)
- [Sa07] D.L. Sales, A.M. Sanchez, R. Beanland, M. Henini, S.I. Molina, Semicond. Sci. Technol. **22**, 168 (2007)
- [So96] G.S. Solomon, J.A. Trezza, A.F. Marshall, J.S. Harris, J. Vac. Sci. Technol. B **14**, 2208 (1996)
- [So97] G.S. Solomon, S. Komarov, J.S. Harris, Jr., Y Yamamoto, J. Cryst. Growth **175/176**, 707 (1997)
- [St38] I.N. Stranski, L. Krastanov, Sitzungsber. Akad. Wiss. Wien., Math.-Naturwiss. Kl, Abt. IIB **146**, 797 (1938), zitiert nach [St04]
- [St92] A.J. Steckl, H.C. Mogul, S. Mogren, Appl. Phys. Lett. **60**, 1833 (1992)

- [St04] J. Stangl, V. Holý, G. Bauer, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 725 (2004)
- [St06] E.A. Stinaff, M. Scheibner, A.S. Bracker, I.V. Ponomarev, V.L. Korenev, M.E. Ware, M.F. Doty, T.L. Reinecke, D. Gammon, *Science* **311**, 636 (2006)
- [St07] E. Stoyanov, *Valence state, coordination and incorporation of Ti and Cr into lower mantle phases: new insight from electron energy-loss spectroscopy*, Dissertation Friedrich-Schiller-Universität Jena (2007)
- [Te93] J. Tersoff, R.M. Tromp, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 2782 (1993)
- [Te96] J. Tersoff, C. Teichert, M.G. Lagally, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1675 (1996)
- [Ti95] K. Tillmann, D. Gerthsen, P. Pfundstein, A. Förster, K. Urban, *J. Appl. Phys.* **78**, 3824 (1995)
- [Tw88] M.E. Twigg, S.N.G. Chu, *CBED measurement of lattice mismatch for sub-micron quaternary structures grown on indium phosphide substrates*, *Ultramicroscopy* **26**, 51-58 (1988)
- [Uk02] A.A. Ukhonov, R.H. Wang, T.J. Rotter, A. Stintz, L.F. Lester, P.G. Eliseev, K.J. Malloy, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 981 (2002)
- [Ul07] J.M. Ulloa, C. Çelebi, P.M. Koenraad, A. Simon, E. Gapihan, A. Letoublon, N. Bertru, I. Drouzas, D.J. Mowbray, M.J. Steer, M. Hopkinson, *J. Appl. Phys.* **101**, 081707 (2007)
- [Ut96] T. Utzmeier, P.A. Postigo, J. Tamayo, R. Garcia, F. Briones, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2674 (1996)
- [Ve21] L. Vegard, *Z. Phys.* **5**, 17 (1921)
- [Ve84] J.A. Venables, G.D.T. Spiller, M. Hanbücken, *Rep. Prog. Phys.* **47**, 399 (1984)
- [Vo26] M. Volmer, A. Weber, *Physik. Chem.* **119**, 277 (1926)

- [Wa99] Z.R. Wasilewski, S. Fafard, J.P. McCaffrey, J. Cryst. Growth **201/202**, 1131 (1999)
- [Wa00a] C. Walther, *Korrelation elektronischer und struktureller Eigenschaften selbstorganisierter InAs-Nanostrukturen der Dimensionen 0 und 1 auf Verbindungshalbleitern*, Dissertation Humboldt-Universität Berlin (2000)
- [Wa00b] C. Walther, W. Hoerstel, H. Niehus, J. Erxmeyer, W.T. Masselink, J. Cryst. Growth **209**, 572-580 (2000)
- [Wa00c] L.G. Wang, P. Kratzer, N. Moll, M. Scheffler, Phys. Rev. B **62**, 1897 (2000)
- [Wa04] Z.M. Wang, K. Holmes, Y.I. Mazur, G.J. Salamo, Appl. Phys. Lett. **84**, 1931 (2004)
- [Wi96] D.B. Williams, C.B. Carter, *Transmission electron microscopy – A textbook for material science*, Plenum press, New York and London (1996)
- [Wu05a] S.E. Wu, C.P. Liu, Nanotechnology **16**, 2507 (2005)
- [Wu05b] Y.Q. Wu, F.H. Li, J. Cui, J.H. Lin, R. Wu, J. Qin, C.Y. Zhu, Y.L. Fan, X.J. Yang, Z.M. Jiang, Appl. Phys. Lett. **87**, 223116 (2005)
- [Xi95] Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen, N. Kobayashi, Phys. Rev. Lett. **75**, 2542 (1995)
- [Zh01] Q. Zhang, J. Zhu, X. Ren, H. Li, T. Wang, Appl. Phys. Lett. **78**, 3830 (2001)
- [Zh03] F.A. Zhao, J. Wu, P. Jin, B. Xu, Z.G. Wang, C.L. Zhang, Physica E **23**, 31 (2004)
- [Zi02] C. Zilkens, *Gestufte Oberflächen und quasieindimensionale Strukturen – Photoemission an 3d-Metallen auf W(110)*, Berichte des Forschungszentrums Jülich, ISSN 0944-2952 (2002)

Eigene Veröffentlichungen und Konferenzbeiträge im Rahmen dieser Arbeit

- [Kü04] T. Kümmell, A. Sauerwald, D. Spranger, G. Bacher, R. Krebs, J.P. Reithmaier, A. Forchel
Poster: „STEM study on 1.3 μ m InAs/GaAs quantum dot structures“
2nd int. conference on semiconductor quantum dots, Banff (2004)
- [Kü05] T. Kümmell, A. Sauerwald, D. Spranger, G. Bacher, R. Krebs, J.P. Reithmaier, A. Forchel
„STEM-study of 1.3 μ m InAs/InGaAs quantum dot structures“
Physica E **26**, 241-244 (2005)
- [Kü06] T. Kümmell, A. Sauerwald, A. Somers, A. Löffler, J.P. Reithmaier, A. Forchel, G. Bacher
„Structural and optical analysis of size-controlled InAs quantum dashes“
Physica E **32**, 108-110 (2006)
- [Lö06] A. Löffler, J.P. Reithmaier, A. Forchel, A. Sauerwald, D. Peskes, T. Kümmell, G. Bacher
„Influence of the strain on the formation of GaInAs/GaAs quantum structures“
J. Cryst. Gro. **286**, pp. 6-10 (2006)
- [Sa04] A. Sauerwald, T. Kümmell, G. Bacher, A. Somers, R. Schwertberger, J.P. Reithmaier, A. Forchel
Poster: „STEM study on size controlled InAs quantum dash structures“
27th int. conference on the physics of semiconductors, Flagstaff (2004)
- [Sa05a] A. Sauerwald, T. Kümmell, G. Bacher, A. Somers, R. Schwertberger, J.P. Reithmaier, A. Forchel
„Structural analysis of InAs quantum dashes grown on InP substrate by scanning transmission electron microscopy“
AIP, Proceedings of 27th international conference on the physics of semiconductors CP772, 591-592 (2005)

- [Sa05b] A. Sauerwald, T. Kümmell, G. Bacher, A. Somers, R. Schwertberger, J.P. Reithmaier, A. Forchel
„Size control of InAs quantum dashes“
Appl. Phys. Lett. **86**, 253112 (2005)
- [Sa05c] A. Sauerwald, T. Kümmell, G. Bacher, A. Somers, R. Schwertberger, J.P. Reithmaier, A. Forchel
Vortrag: „Größenkontrolle von InAs quantum dashes“
Tagung der deutschen physikalischen Gesellschaft, Berlin (2005)
- [Sa06a] A. Sauerwald, T. Kümmell, D. Peskes, G. Bacher, A. Löffler, J.P. Reithmaier, A. Forchel
„Scanning transmission electron microscope study on vertically correlated InGaAs/GaAs quantum dots“
Appl. Phys. Lett. **89**, 023121 (2006)
- [Sa06b] A. Sauerwald, T. Kümmell, A. Löffler, A. Somers, J.P. Reithmaier, A. Forchel, G. Bacher
Poster: „Analysis of vertically correlated In(Ga)As quantum structures via scanning transmission electron microscopy“
4th int. conference on quantum dots, Chamonix (2006)
- [Sa06c] A. Sauerwald, T. Kümmell, A. Löffler, A. Somers, J.P. Reithmaier, A. Forchel, G. Bacher
„Scanning transmission electron microscopy of vertically stacked self organized structures“
Phys. stat. sol. (c) **3**, no. 11, 3947-3950 (2006)

Beteiligung an weiteren Veröffentlichungen

- [Ku07] R. Kudrawiec, M. Motyka, J. Misiewicz, A. Somers, R. Schwertberger, J.P. Reithmaier, A. Forchel, A. Sauerwald, T. Kümmell, G. Bacher
„Contactless electroreflectance of InAs/InGaAlAs quantum dashes grown on InP substrate: Analysis of the wetting layer transition“
J. Appl. Phys. **101**, 013507 (2007)
- [Ma03a] A. Malcoci, A. Stöhr, K. Lill, F. Siebe, P. van der Waal, A. Sauerwald, R. Güsten, D. Jäger
„Optical submillimeter-wave generation employing antenna integrated ultra-fast travelling-wave 1.55 μ m photodetectors“
IEEE MTT-S, int. microwave symposium (IMS), conf. paper, Philadelphia, Pennsylvania, vol. 1, pp. 143-146 (2003)
- [Ma03b] A. Malcoci, A. Stöhr, K. Lill, F. Siebe, P. van der Waal, A. Sauerwald, R. Gindera, R. Güsten, D. Jäger
„Optical (sub)millimeter-wave generation employing ultrafast waveguide and antenna coupled travelling-wave 1.55 μ m photodetectors“
Proceedings of the NEFERTITI Winterschool, Winterberg (2003)
- [Ma04] A. Malcoci, A. Stöhr, A. Sauerwald, S. Schulz, D. Jäger
„Waveguide and antenna coupled travelling-wave 1.55 μ m photodetectors for optical (sub)millimeter wave generation“
Conf. of the SPIE, conf. paper, Strasbourg (2004)
- [St03] A. Stöhr, A. Malcoci, A. Sauerwald, I. c. Mayorga, R. Güsten, D. Jäger
„Ultra-wide-band traveling-wave photodetectors for photonic local oscillators“
IEEE J. of Lightwave Technology **21**, no.12, pp. 3062-3070 (2003)

Danksagung

Die hier vorliegende Doktorarbeit entstand am Lehrstuhl Werkstoffe der Elektrotechnik der Universität Duisburg-Essen in der Zeit von Dezember 2003 bis November 2007. An dieser Stelle möchte ich allen Personen danken, die ihren Teil zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Herrn Prof. Dr. Bacher danke ich für die Möglichkeit, diese Arbeit an seinem Lehrstuhl anfertigen zu können, sowie für die vielen nützlichen Anregungen und die stets freundliche Förderung dieser Arbeit.

Herrn Prof. Dr. Jäger danke ich sehr herzlich für die Übernahme des Korreferats.

Insbesondere möchte ich mich bei meinem Gruppenleiter Herrn Dr. Tilmar Kümmell bedanken, der sich stets die Zeit nahm für wertvolle wissenschaftliche und technische Diskussionen, die zusätzlich motivierten.

Herrn Dipl.-Phys. André Somers und Herrn Dipl.-Ing. Andreas Löffler vom Lehrstuhl für Technische Physik der Universität Würzburg danke ich für die Herstellung vieler hochwertiger MBE-Proben.

Bedanken möchte ich mich weiterhin bei Frau Nicole Stracke und Frau Kerstin Fehr für die unermüdliche Arbeit bei den RTEM-Probenpräparationen.

Herrn Lebeau danke ich für die gemeinsamen, oft schweißtreibenden Bastelstunden am RTEM und die stets hilfsbereite Unterstützung bei technischen Problemen.

Für viele interessante Diskussionen, auch fernab der Wissenschaft, danke ich allen Mitarbeitern des Lehrstuhls Werkstoffe der Elektrotechnik, insbesondere auch Herrn Dipl.-Ing. Robert Arians, Herrn Dipl.-Phys. Simon Halm und Herrn Dipl.-Ing. Sasa Vinaji.

Der gesamten Gruppe des Lehrstuhls Werkstoffe der Elektrotechnik möchte ich sehr herzlich für die stets gute Zusammenarbeit und das überaus angenehme Arbeitsklima danken.

Vor allem jedoch gebührt meiner Frau Carmen mein liebevoller Dank für die viele Geduld, mit der sie mich beim Anfertigen dieser Arbeit sehr unterstützt hat. Ebenso danke ich meinen Eltern Inge und Dieter für die persönliche Unterstützung und das Ermöglichen meines Studiums. Weiterhin danke ich meinem Vater und meiner Frau für das Lektorat und die Anmerkungen zum Design der Arbeit.